

بررسی نسبت گرانروی سیال تزریقی و سیال مخزنی در پیش‌بینی زمان‌برون‌زد با استفاده از مفاهیم تراوش

سارا شکراله‌زاده بهبهانی، محسن مسیحی و محمدحسین غضنفری

بررسی اثر جریان مارانگونی و چینش مولکولی در پایداری فوم ایجاد شده توسط نانوذرات - مطالعه آزمایشگاهی

فاطمه رئیسی، مریم خسروی، بهزاد رستمی، حمید وطن پرست، علیرضا فتح‌اللهی

بهینه‌سازی کاتالیست  $Ni/Al_2O_3$  برای فرآیند ریفرمینگ خشک متان در راکتور میکروکانالی

سید رضا یحوی و غلامرضا مرادی

بررسی رخساره‌ها، فرآیندهای دیاژنز و محیط رسوبی سازند شوريجه در میدان گازی خانگیران

زهره مشایخی، علی کدخدایی، علی سلگی، سید احمد بابازاده و محسن آل علی

تجزیه و تحلیل رخساره‌ای، محیط رسوبی و فرآیندهای دیاژنتیکی سازند ایلام میدان گچساران، حوضه زاگرس

مهدی احمدی نبی، داوود جهانی و بهمن سلیمانی

حذف کلرید منیزیم توسط غشاهای نانوفیلتراسیون تهیه شده از نانوذرات اکسید مس

شکیبا قهپه‌ئی، عبدالرضا مقدسی، سمانه بنده‌علی، مرتضی حبیبی و مریم اسکندری

بررسی اثرات مقیاس pH و امواج فراصوت بر پایداری نانوذرات مس اکسید در فرآیند جوشش استخری

محسن خوشه‌چین، سهراب فتاحی، فرهاد سلیمی و اکبر محمدی دوست

مدل‌سازی تخلخل با استفاده هم‌زمان نشان‌گرهای لرزه‌ای و رخساره‌های الکتریکی در مخزن سروک

در یکی از میادین نفتی ایران

ولی مهدی‌پور، احمدرضا ربانی و علی کدخدائی

بهینه‌سازی جداسازی آسفالتین از باقیمانده برج تقطیر در خلأ با استفاده از استخراج مایع-مایع به روش سطح-پاسخ

رضا عسگری، وهب قلعه‌خندابی، علیرضا فضلعلی و محمود رضا نیک خلق و عبدالرضا مقدسی

طراحی سیستم کنترل پیش‌بین غیرخطی مبتنی بر مدل برای فرازآوری با استفاده از پمپ الکتریکی درون‌چاهی

فریدالدین میرزایی هرسینی و مهدی نظری‌صارم

Effect of Viscosity Ratio of Injection Fluid and Reservoir Fluid on Prediction of Breakthrough Time Using Percolation Concepts

Sara Shokrollahzadeh Behbahani, Mohsen Masihi and Mohammad Hossein Ghazanfari

Investigation of the Effect of Marangoni Flow and Molecular Arrangement on the Stability of Nanoparticle-stabilized Foam- An Experimental Study

Fateme Reisi, Maryam Khosravi, Behzad Roštami, Hamid Vatanparast and Alireza Fathollahi

Optimization of  $Ni/Al_2O_3$  Catalyst for Dry Methane Reforming Process in Microchannel Reactor

Seyed Reza Yahyavi and Gholamreza Moradi

Facies Analysis, Diagenesis Processes and Sedimentary Environment of Shurijeh Formation in Khangiran Gas Field

Zahra Mashayekhi, Ali Kadkhodaie, Ali Solgi, Seyed Ahmad Babazadeh and Seyed Mohsen Ale Ali

Microfacies, Sedimentary Environment and Diagenetic Processes Analysis of Ilam Formation in Gachsaran Oil Field, Zagross Basin

Mehdi Ahmadi Nabi, Davoud Jahani and Bahman Soleimani

Magnesium Chloride Removal by Nanofiltration Membranes Prepared from Cuprous Oxide Nanoparticles

Shakiba Ghohyei, Abdolreza Moghadassi, Samaneh Bandehali, Morteza Habibi and Maryam Eskandari

Investigation of the Effects of pH Scale and Ultrasonic Waves on the Stability of Copper Oxide Nanoparticles in the Pool Boiling Process

Mohsen Khooshehchin, Sohrab Fathi, Farhad Salimi and Akbar Mohammadidoust

Porosity Modeling Using Simultaneously Seismic Attribute and Electrofacies Data in Sarvak Reservoir of an Iranian Oil Field

Vali Mehdipour, Ahmad Reza Rabbani and Ali Kadkhodaie

Optimization of Asphaltenes Separation from Vacuum Distillation Residue using Liquid-Liquid Extraction by Response-surface Method

Reza Asgari, Vahab Ghalehkhondabi, Alireza Fazlali, Mahmodreza Nikkholgh and Abdoreza Moghadassi

Nonlinear Model Predictive Controller for Electrical Submersible Pump Lifted Wells

Farid Aldin Mirzaie Harsini and Mehdi Nazari Sarem



## دوماهنامه علمی - پژوهشی

سال سی و دوم، شماره ۱۲۵

مهر و آبان ۱۴۰۱



### داوران این شماره:

محمدرضا احسانی (دانشگاه صنعتی اصفهان)  
محمد حسین اقبال احمدی (دانشگاه تفرش)  
حمیدرضا آقابزرگ (دانشگاه تربیت مدرس)  
بیبا آیتی (دانشگاه تربیت مدرس)  
مهناز پورخلیل (پژوهشگاه صنعت نفت)  
محمودرضا پیشوایی (دانشگاه صنعتی شریف)  
مریم تخت روانچی (شرکت پژوهش و فناوری پتروشیمی)  
بهرام حبیب‌نیا (دانشگاه صنعت نفت)  
مسعود حق شناس فرد (دانشگاه صنعتی اصفهان)  
علیرضا خزعلی (دانشگاه صنعتی اصفهان)  
محمدرحمانی (دانشگاه صنعتی امیرکبیر)  
علیمراد رشیدی (پژوهشگاه صنعت نفت)  
فریبرز رشیدی (دانشگاه صنعتی امیرکبیر)  
امیرحسین سعیدی دهاقانی (دانشگاه تربیت مدرس)  
محمدعلی صالحی (دانشگاه اصفهان)  
شکوفه طیبی (پژوهشگاه صنعت نفت)  
قاسم عقلی (دانشگاه فردوسی مشهد)  
محمدحسین غضنفری (دانشگاه صنعتی شریف)  
سیدمبین فاطمی (دانشگاه صنعتی شریف)  
مجتبی قائدی (دانشگاه شیراز)  
رحیم کدخدایی (دانشگاه صنعتی تبریز)  
حسن ماهانی (دانشگاه صنعتی شریف)  
اسداله محبوبی (دانشگاه فردوسی مشهد)  
بهرام موحد (شرکت CAPE)  
محسن نصرافهانی (دانشگاه صنعتی اصفهان)

### آدرس:

تهران، بلوار غربی مجموعه ورزشی آزادی، پژوهشگاه صنعت نفت، دفتر مجله پژوهش نفت  
صندوق پستی: ۱۳۷-۱۴۶۶۵  
تلفن: ۴۸۲۵۲۱۲۹ و ۴۸۲۵۳۲۶۳  
نمبر: ۴۴۷۳۹۷۱۲

<http://journals.ripi.ir>

وبگاه اینترنتی

شماره پروانه انتشار: ۱۰۲/۷۹۹۲

ISSN ۲۳۴۵-۲۹۰۰

صاحب امتیاز: پژوهشگاه صنعت نفت

مدیر مسئول: جعفر توفیقی

سرمدیر: محمدرضا احسانی

مدیر اجرایی: طیبه مرادیان

ویراستار: فرهاد رحمانی چپانه

صفحه آرایی: نفیسه دلدار و پری ناز نوری

چاپ، لیتوگرافی و صحافی: چاپ گنجینه مینیاتور

### هیأت تحریریه:

محمدرضا احسانی، استاد دانشگاه صنعتی اصفهان  
حمیدرضا آقابزرگ، استاد پژوهشگاه صنعت نفت  
محمدرضا امیدخواه، استاد دانشگاه تربیت مدرس  
داریوش باستانی، استاد دانشگاه صنعتی شریف  
جعفر توفیقی، استاد دانشگاه تربیت مدرس  
محمدرضا جعفری نصر، استاد پژوهشگاه صنعت نفت  
ترانه جعفری بهبهانی، دانشیار پژوهشگاه صنعت نفت  
احسان خامه‌چی، استاد دانشگاه صنعتی امیرکبیر  
فرهاد خراشه، استاد دانشگاه صنعتی شریف  
فریبرز رشیدی، استاد دانشگاه صنعتی امیرکبیر  
علیمراد رشیدی، استاد پژوهشگاه صنعت نفت  
رضا رضایی، استاد دانشگاه کرتین استرالیا  
علی اکبر سیف‌کردی، استاد دانشگاه صنعتی شریف  
علی کدخدایی ایلخچی، دانشیار دانشگاه تبریز  
محمدرضا کمالی، استاد دانشگاه ادیت کاوان استرالیا  
فرهاد عین مظفری، استاد دانشگاه رایرسون کانادا  
محمدحسین غضنفری، دانشیار دانشگاه صنعتی شریف  
محسن مسیحی، استاد دانشگاه صنعتی شریف  
مهراب مهرور، استاد دانشگاه رایرسون کانادا  
سیدرضا موسوی حرمی، استاد دانشگاه فردوسی مشهد  
محسن نصر اصفهانی، استاد دانشگاه صنعتی اصفهان  
مهدی نکومنش، استاد پژوهشگاه پلیمر و پتروشیمی ایران  
ابراهیم واشقانی فراهانی، استاد دانشگاه تربیت مدرس  
شاپور وثوقی، استاد دانشگاه کانزاس آمریکا  
منوچهر وثوقی، استاد دانشگاه صنعتی شریف

• مجله پژوهش نفت در پایگاه‌های زیر نمایه می‌شود:

• پایگاه استنادی علوم جهان اسلام (ISC): [www.isc.gov.ir](http://www.isc.gov.ir)

• اطلاعات علمی جهاد دانشگاهی ([www.sid.ir](http://www.sid.ir))

• بانک اطلاعات نشریات کشور ([www.magiran.com](http://www.magiran.com))

• DOAJ: ([www.doaj.org/](http://www.doaj.org/))

• Chemical Abstracts Service (CAS): ([www.cas.org](http://www.cas.org))

• Indexcopernicus: ([www.indexcopernicus.com](http://www.indexcopernicus.com))

• WorldCat: ([www.worldcat.org](http://www.worldcat.org))

• Leibniz Information Centre for Science and Technology (TIB): ([www.tib.eu](http://www.tib.eu))

- ۳..... بررسی نسبت گرانروی سیال تزریقی و سیال مخزنی در پیش‌بینی زمان‌برون‌زد با استفاده از مفاهیم تراوش  
سارا شکراله‌زاده بهبهانی، محسن مسیحی\* و محمدحسین غضنفری
- ۱۷..... بررسی اثر جریان مارانگونی و چینش مولکولی در پایداری فوم ایجاد شده .....  
توسط نانوذرات - مطالعه آزمایشگاهی  
فاطمه رئیسی، مریم خسروی\*، بهزاد رستمی، حمید وطن پرست، علیرضا فتح‌اللهی
- ۲۷..... بهینه‌سازی کاتالیست  $\text{Ni/Al}_2\text{O}_3$  برای فرآیند ریفرمینگ خشک متان در راکتور میکروکانالی .....  
سید رضا یحیوی و غلامرضا مرادی\*
- ۳۶..... بررسی رخساره‌ها، فرآیندهای دیاژنز و محیط رسوبی سازند شورجه در میدان گازی خانگیران .....  
زهرامشایخی، علی کدخدایی\*، علی سلگی، سید احمد بابازاده و محسن آل‌علی
- ۶۰..... تجزیه و تحلیل رخساره‌ای، محیط رسوبی و فرآیندهای دیاژنتیکی سازند ایلام میدان گچساران، .....  
حوضه زاگرس  
مهدی احمدی نبی، داوود جهانی و بهمن سلیمانی\*
- ۷۷..... حذف کلرید منیزیم توسط غشاهای نانوفیلتراسیون تهیه شده از نانوذرات اکسید مس .....  
شکیبا قهیه‌ئی، عبدالرضا مقدسی\*، سمانه بنده‌علی\*، مرتضی حبیبی و مریم اسکندری
- ۹۱..... بررسی اثرات مقیاس pH و امواج فراصوت بر پایداری نانوذرات مس اکسید در فرآیند جوشش استخری .....  
محسن خوشه‌چین، سهراب فتحی، فرهاد سلیمی\* و اکبر محمدی دوست\*
- ۱۱۳..... مدل‌سازی تخلخل با استفاده هم‌زمان نشان‌گرهای لرزه‌ای و رخساره‌های الکتریکی در مخزن سروک .....  
در یکی از میادین نفتی ایران  
ولی مهدی‌پور، احمد رضا ربانی\* و علی کدخدائی
- ۱۲۹..... بهینه‌سازی جداسازی آسفالتین از باقیمانده برج تقطیر در خلأ با استفاده از استخراج .....  
مایع-مایع به روش سطح-پاسخ  
رضا عسگری، وهب قلعه‌خندابی، علیرضا فضلعلی\*، محمود رضا نیک خلق و عبدالرضا مقدسی
- ۱۴۵..... طراحی سیستم کنترل پیش‌بین غیرخطی مبتنی بر مدل برای فراز‌آوری .....  
با استفاده از پمپ الکتریکی درون‌چاهی  
فریدالدین میرزایی هرسینی و مهدی نظری‌صارم\*
- ۱۶۲..... راهنمایی تهیه مقالات.....

# بررسی نسبت گرانروی سیال تزریقی و سیال مخزنی در پیش‌بینی زمان‌برون‌زد با استفاده از مفاهیم تراوش

سارا شکراله زاده بهبهانی، محسن مسیحی\* و محمدحسین غضنفری

دانشکده مهندسی شیمی و نفت، دانشگاه صنعتی شریف، تهران، ایران

تاریخ دریافت: ۱۴۰۰/۰۵/۹ تاریخ پذیرش: ۱۴۰۰/۱۲/۰۴

## چکیده

زمان‌برون‌زد سیال تزریقی در فرآیند تزریق آب یک معیار عملکرد مخزن است که تحت تأثیر موقعیت و عملیات چاه است. پیش‌بینی این زمان‌برون‌زد برای طراحی فرآیند و الگوهای تزریق در توسعه مخزن مفید است. روش متعارف برای این کار شبیه‌سازی مخزن بوده که که وقتی توزیع زمان‌برون‌زد مورد نظر باشد این کار بسیار زمان‌بر است. یک روش جایگزین در تعیین سریع زمان‌برون‌زد استفاده از رویکرد تئوری پرکولاسیون است. در این روش با استفاده از برخی خصوصیات مخزنی موجود مانند نسبت خالص به ناخالص، و ابعاد مخزن، امکان پیش‌بینی سریع نمودار توزیع زمان‌برون‌زد وجود دارد. به هر حال، برخی فرضیات لحاظ شده در توسعه اولیه رابطه مقیاس‌بندی توزیع زمان‌برون‌زد مانند فرض برابری گرانروی دو سیال تزریقی و تولیدی کاربردهای میدانی آنرا محدود نموده است. به منظور بسط کاربرد روابط مقیاس‌بندی زمان‌برون‌زد لازم است اثرات گرانروی متفاوت دو سیال بر روابط مقیاس‌بندی زمان‌برون‌زد دیده شود. به‌طور خاص از یک رویکرد بدون بعدسازی زمان‌برون‌زد بر مبنای زمان مشخصه بی‌بعد استفاده می‌شود. با اجرای شبیه‌سازی‌های مختلف جریان در مخزن تأثیر تغییرات گرانروی فازها بر زمان‌برون‌زد بررسی گردید. نتایج این مطالعه نشان می‌دهد زمان مشخصه مناسب در رابطه مقیاس‌بندی زمان‌برون‌زد وابستگی به درجه اشغال شدگی و نسبت گرانروی دو فاز به فرم یک رابطه توانی با توان  $1/3$  دارد. لذا با تعمیم رابطه توزیع زمان‌برون‌زد با در نظر گرفتن این وابستگی توانی پیش‌بینی زمان‌برون‌زد سیال تزریقی در چاه تولیدی مخزن با دقت قابل قبولی امکان پذیر است. در انتها با پیاده‌سازی این رویکرد در یک مخزن واقعی و مقایسه نتایج زمان‌برون‌زد با نتایج شبیه‌سازی‌های تجاری به اعتبارسنجی رابطه تعمیم داده شده برای زمان‌برون‌زد تعمیم داده شده پرداخته شد.

**کلمات کلیدی:** گرانروی، مفهوم تراوش، تزریق آب، زمان‌برون‌زد، محیط متخلخل مخزن

## مقدمه

این سیال می‌تواند مایع، گاز، جریان برق، حرارت، نور، عامل بیماری‌زا و غیره باشد. فیلتر نیز می‌تواند یک محیط متخلخل باشد. این فیلتر سیالات درون مخزن را از خود عبور می‌دهد [۱].

تراوش<sup>۱</sup> به عبور سیال از یک فیلتر اطلاق می‌شود.

\*مسئول مکاتبات

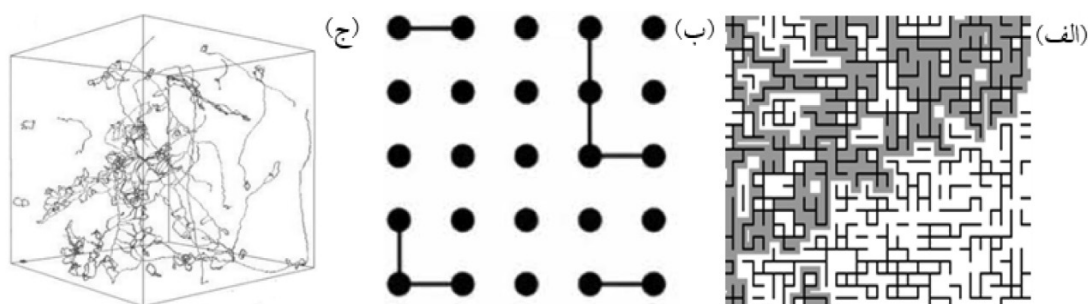
آدرس الکترونیکی: masihi@sharif.edu

شناسه دیجیتال: (DOI:10.22078/PR.2022.4570.3060)



و ۲. در مسئله این تحقیق، هنگام تزریق یک سیال به محیط متخلخل (مثلاً به منظور بازیافت ثانویه و با هدف نگهداشت فشار مخزن)، هرچه حجم سیال تزریقی بیشتر شود، توزیع اشباع سیال تزریقی در محیط متخلخل بیشتر شده و امکان برقراری ارتباط میان دو سمت سیستم (یعنی چاه تولیدی و چاه تزریقی) از طریق سیال تزریقی بیشتر خواهد شد [۳]. ارزیابی کمی مقدار حد آستانه (یا به عبارتی زمان-برون زد سیال تزریقی) و تعیین رابطه بین میزان برقراری ارتباط (که به آن بهم‌پیوستگی هم گفته می‌شود) درون سیستم با توزیع اشباع سیال تزریقی با استفاده از نظریه پرکولاسیون انجام می‌گیرد [۴]. برای مثال سیال تمایل دارد از مسیر تراواتر عبور نماید و ممکن است مسیرهای باریک‌تر جاروب نشود یا در اثر تغییرات فشار و اشباع سیالات، یک فاز به دام افتاده و مسیرهایی از محیط مسدود گردند. در این حالت، ساختار هندسی جریان و خوشه‌ها آرایش جدیدی پیدا خواهند آورد [۵]. از نظریه پرکولاسیون در مقیاس میدانی، می‌توان برای تعیین زمان-برون زد سیال تزریقی، بهترین فاصله میان چاهی<sup>۱</sup>، میزان ارتباط استاتیک و دینامیک دو چاه با یکدیگر و رفتار تولیدی بعد از برون زد سیال در صورت تزریق در مخزن (مانند افت تولید نفت و افزایش برش آب در صورت تزریق آب) استفاده کرد [۶]. نمونه‌هایی از مدل‌های مختلف تصادفی پرکولاسیون در شکل ۱ نمایش داده شده‌اند.

جریان سیال در یک محیط متخلخل تحت تأثیر نیروهای وارده بوده و با حرکت در مسیر پیش روی حرکت خود، به مسیرهای مختلف منحرف و منشعب شده و گسترش می‌یابد. کوتاه‌ترین مسیر می‌تواند کنترل‌کننده زمان-برون زد (اولین مشاهده) سیال تزریقی در نقطه هدف باشد. اولین لحظه (با کمترین اندازه خوشه) که در آن ارتباط دو سوی محیط متخلخل توسط سیال تزریقی برقرار می‌گردد، آستانه پرکولاسیون ( $p_c$ ) نامیده می‌شود. در تئوری پرکولاسیون؛ این آستانه به شکل بدون بعد گزارش شده و نشان می‌دهد حداقل چه کسری از حفرات بایستی اشغال شوند تا برای اولین بار جریان در کل سیستم برقرار گردد. لذا اگر احتمال اشغال شدن یک حفره  $p$  باشد، قبل از حد آستانه ( $p < p_c$ ) احتمال وجود چنین خوشه‌ای، صفر است. برای مقادیر پس از حد آستانه ( $p > p_c$ ) احتمال وجود خوشه بی‌نهایت، برابر با یک است. با توجه به تصادفی بودن خصوصیات این چنین سیستمی (مثلاً اندازه حفرات یا مسیر سیال)، حالات بسیاری برای جریان ممکن است وجود داشته باشد. لذا، ابتدا یک جامعه آماری احتمالی از تحقق‌های ممکن (در این جا صدها شبیه‌سازی از مدل‌های تصادفی محیط متخلخل) تهیه می‌شود. سپس تخمین حد آستانه با محاسبه یک متوسط آماری به‌دست می‌آید که این تخمین با بررسی تعداد بسیار زیادی از حالات ممکن سیستم، تعیین می‌شود [۱]



شکل ۱ نمایش انواع مدل‌های تراوشی شبکه‌ای شامل مدل‌های دوبعدی (الف) جایگاهی (ب) باندی و (ج) مدل سه‌بعدی

هدف این مطالعه بررسی زمان بررسی زمان برون زد در مقیاس میدانی با استفاده از روابط پرکولاسیون بمنظور نزدیک نمودن پیش‌بینی‌های روش پرکولاسیون به رفتار واقعی مخازن هیدرکروبویری است. به‌طور خاص، تأثیر نسبت گرانروی سیال تزریقی به تولیدی بر این رابطه بررسی می‌شود. در ابتدا با فرض مدل‌های ساده روابط اولیه پرکولاسیون مورد ارزیابی قرار می‌گیرند. در ادامه برای بهبود پیش‌بینی‌ها، متغیرهای مخزنی وارد روابط پرکولاسیون می‌گردند. در هر مرحله مقایسه بر مبنای اجرای تعداد زیادی از شبیه‌سازی‌ها انجام می‌گیرد.

### رویکرد تراوش

اولین مطالعاتی که در آن از پرکولاسیون دینامیک برای مدل‌سازی جریان در محیط متخلخل استفاده شد مربوط به اوایل دهه هشتاد است که توسط دو گروه مستقل از هم انجام گرفت. در این مطالعات، محیط متخلخل ابتدا توسط یک فاز اشباع شده است که در ادامه توسط فاز تزریقی از حفرات بیرون رانده می‌شود [۷ و ۸]. دو محقق با بازنگری در شرایط مرزی مسئله و در نظر گرفتن به دام افتادن سیالات، قدم بزرگی در حوزه استفاده از تئوری پرکولاسیون در مهندسی نفت برداشتند. آن‌ها برای روش پیشنهادی خود برای نخستین بار، از نام "پرکولاسیون تهاجمی"<sup>۱</sup> استفاده کردند. پرکولاسیون تهاجمی یک روش شبه‌پایا برای مدل‌سازی تزریق غیرامتزاجی تحت تأثیر نیروهای موپینه (نیروهای چسبندگی<sup>۲</sup> قابل اغماض) است [۹]. نتایج Wilkin-son و Willemsen تنها براساس شبیه‌سازی بوده و فرم توانی مدل آن‌ها بدون تعبیر ریاضی ارائه شده بود. اما این روابط پس از انتشار به سرعت توسعه داده شد و بر مبنای قضیه‌های ریاضی به اثبات رسید [۱۰]. Bak و همکاران مطالعه‌ای انجام دادند که مجدداً برقراری رابطه توانی برای سیستم‌های تراوشی دینامیک اثبات شد [۱۱]. گرچه وجود

رابطه توانی در این بررسی مشخص گردید اما در خصوص کلی بودن مقدار توان در این روابط و وابستگی آن به خصوصیات سیستم (از جمله اندازه سیستم) بحثی ارائه نشد. در مطالعه Bak و مطالعات بعدی توسط Dickman و Munoz، نشان داده شد که پدیده‌های مختلف در طبیعت که از تعادل خارج می‌شوند حین تغییر، به‌صورت خودجوش به سوی ایجاد یک حالت منظم پیش می‌روند. این تمایل به نظم بدون اعمال نیروی خارجی بوده و به این دلیل محققین دیگری نام این پدیده را حالت بحرانی خودسازمان‌یافته<sup>۳</sup> نامیدند [۱۲]. از سال ۱۹۸۳ تا به امروز، لحظه برون زد سیال تزریقی (آستانه بحرانی اول) مورد بررسی قرار گرفته است اما لحظه رسیدن به اشباع باقی‌مانده نفت (آستانه دوم) بسیار کمتر مورد توجه قرار گرفته است [۱۳]. (هم‌چنین به تازگی نحوه تعمیم روابط مقیاس‌بندی شده بر پایه تئوری تراوش در مقیاس حفره برای نمونه‌های تصاویر سی تی پیاده‌سازی گردید [۱۴]. که تا حد قابل قبولی پیش‌بینی‌های این رویکرد را تأیید می‌کند. نظریه پرکولاسیون برای بررسی عملیات تحریک چاه از طریق ایجاد شکاف‌های هیدرولیکی کاربرد دارد. در مطالعه Rui و همکاران، حد آستانه فشار که در آن، سیال تزریقی وارد سنگ متخلخل می‌شود مورد ارزیابی قرار گرفت. آن‌ها نشان دادند که آستانه ورود سیال به درون منافذ سنگ بستگی به تخلخل و تراوایی دارد و دو نوع سنگ با تخلخل یکسان و تراوایی متفاوت دارای حدود آستانه متفاوتند. در این بررسی، یک مخزن متراکم دوبعدی (با تخلخل ۰/۸) که در آن عملیات تحریک چاه با تزریق آب انجام شده برای شبیه‌سازی (با نرم‌افزار تجاری CMG) شبیه‌سازی شد و نمودار دبی تولید نفت و تولید تجمعی نفت برحسب زمان مورد تحلیل قرار گرفت [۱۵].

1. Invasion  
2. Viscous Forces  
3. Self-Organized Criticality

برای پیش‌بینی در مقیاس حفره (برای مثال در رابطه با تراوایی، اشباع سیالات و غیره) ساختاری تصادفی دارد که به‌صورت قطعی قابل تعیین نیست و تنها با استفاده از روابط فیزیکی آماری و استفاده از احتمالات می‌توان رابطه کلی برای بررسی رفتار دینامیک محیط متخلخل ارائه کرد. یکی از موارد جدید در این کار تحقیقاتی استفاده از مقیاس میدانی برای مطالعه است و از مدل‌هایی با مقیاس میدان و چاه تزریقی و تولیدی برای تهیه جامعه آماری استفاده شده است.

### روش تحقیق و رویکرد مدل‌سازی

Andrade و همکاران با در نظر گرفتن اندازه سیستم (L) و میزان اشغال‌شدگی جایگاه‌ها (p) به بررسی ثوابت روابط پرکولاسیون پرداختند. نتیجه مطالعه آن‌ها در قالب جدول ثوابت (که دارای مقادیر ثابت و کلی هستند) ارائه شد [۱۶]. در همان سال، King و همکاران در مطالعه دیگری، رابطه‌ای را برای زمان پس از برون‌زد سیال تزریقی در یک مخزن واقعی بررسی نمودند. نتیجه این بررسی رضایت‌بخش بود. در این مطالعه برای پیش‌بینی حجم تولید نفت پس از برون‌زد (V) رابطه ۱ پیشنهاد شد. این رابطه برحسب بعد فرکتالی backbone و زمان تولید نوشته شده است. توان  $\beta$  براساس نتایج شبیه‌سازی حدود  $0.0008 \pm 0.063$  محاسبه شد [۱۷].

$$V(t \rightarrow \infty) \sim \left(\frac{r^{d_B}}{t}\right)^\beta \quad (1)$$

که در آن، t زمان برون‌زد و r فاصله بین دو نقطه تزریق و تولید و  $d_B$  توان فرکتالی است. در مطالعه مذکور، رابطه پرکولاسیون برای مخازن نفتی تحت تزریق آب با فرمولاسیون کلی زیر ارائه شد [۱۷].

$$P(t_{br} | r, L, p) \sim \frac{1}{r^{d_i}} \left(\frac{t_{br}}{r^{d_i}}\right)^{-g_i'} \exp(-a(\frac{t_{br}}{r^{d_i}})^{-\phi}) \quad (2)$$

$$\exp(-b(\frac{t_{br}}{L^{d_i}})^{\psi}) \exp(\frac{-ct_{br}}{|p - p_c|^{-\nu d_i}})$$

متغیرهای رابطه فوق در جدول ۱ ارائه شده‌اند [۱۷].

از کاربردهای دیگر رویکرد تراوش در مقیاس میدانی، تخمین خصوصیات دینامیک جریان مانند زمان‌برونزد سیال تزریقی در چاه‌های تولیدی است. بررسی‌های اولیه توسط Buldyrev و Andrade همکاران براساس شبیه‌سازی قدم تصادفی منجر به ارائه تابع توزیع زمان‌برونزد وابسته به درجه اشغال شدگی شد [۱۶ و ۱۷]. رویکرد مشابهی توسط گنجه قزوینی و همکاران برای وابستگی توزیع زمان‌برونزد به درجه اشغال شدگی محیط متخلخل و مقایسه نتایج آن با شبیه‌سازی جریان صورت گرفت [۱۸].

تعمیم رابطه ارائه زمان‌برونزد به شرایط میدانی نیازمند در نظر گرفتن هندسه جریان در مخزن بود که توسط شکراله زاده و همکاران با معرفی زمان مشخصه وابسته به هندسه جریان ارائه گردید [۱۹].

هم‌چنین صادق نژاد و همکاران به ارائه روش‌هایی برای تعمیم رویکرد پرکولاسیون برای دستیابی به برخی مشخصه‌های استاتیکی و دینامیکی مخازن در مقیاس میدانی مانند بهم پیوستگی بین چاه‌ها یا الگوی چاه‌ها پرداختند [۲۰-۲۲]. به‌طور خاص یکی از مقایسه‌های کاربردی برای تخمین زمان‌برونزد با به‌کارگیری روابط مقیاس‌بندی توزیع زمان‌برونزد سیال تزریقی در چاه تولیدی و مقایسه با نتایج حاصل از شبیه‌سازی جریان با نرم‌افزارهای تجاری در فرآیند سیلاب‌زنی توسط صادق نژاد و مسیحی ارائه گردید که تطابق نسبتاً خوبی را نشان می‌داد [۲۳].

البته مواردی مانند تفاوت گرانروی سیالات تزریقی و تولیدی و تفاوت نمودارهای تراوایی نسبی از نمودار خطی و تعیین استانه‌ای برای باینری‌سازی نقشه تراوایی مخزن از مسائلی است که در تعمیم رابطه مقیاس‌بندی زمان‌برونزد مؤثر است. براساس آنچه مطرح گردید روش پرکولاسیون در مهندسی نفت به‌صورت محدود استفاده شده است. این روش آماری نسبتاً جدید بوده و بیشتر استفاده آن نیز مربوط به مقیاس حفره است. جالب است که با وارد شدن به مقیاس حفره در عکس‌برداری از آن، محققین به این نتیجه رسیده‌اند که ارائه روابط

جدول ۱ تعریف متغیرهای رابطه ۱ پرکولاسیون [۱۷]

P	$t_{br}$	L	p	R	$p_c$
احتمال زمان برون زد برای مخزنی دوبعدی با ابعاد $L^2$ ، میزان ضخامت خالص به ناخالص $p$ و فاصله بین چاهی $t$ و زمان برون زد $t_{br}$	زمان برون زد (بدون بعد)	طول مخزن (بدون بعد)	ضخامت کل به مفید	فاصله بین چاهی (بدون بعد)	حد آستانه (۰/۶۶۸)

و  $P$ ، به ترتیب ویسکوزیته، اندازه ناحیه تراوا (ماسه سنگ در مدل)، شعاع چاه، افت فشار محیط، تراوایی و تخلخل است. برای تعیین این زمان از فرض رابطه دارسی به عنوان رابطه پایه استفاده شده است (با فرض برقراری این جریان در محیط ماسه های تراوای مخزنی حین حرکت سیال از چاه تولیدی به چاه تزریقی). با فرض وجود رابطه دارسی و وجود تعداد زیادی بلوک های ماسه ای بین مسیر چاه تولیدی و تزریقی در کنار هم مدت زمان لازم برای حرکت،  $t_s$ ، از رابطه زیر محاسبه می شود:

$$t_s = \frac{r_s \mu \ln\left(\frac{r}{r_w}\right)}{1.127 * 5.615 * k_s (p_{Injection} - P_{Production})} \quad (5)$$

رابطه فوق به طریق مشابه برای هندسه جریان خطی مخازن هم می تواند محاسبه گردد که نوع دیگری از هندسه جریانی است [۱۷]. در رابطه ۵ با جایگزینی  $\mu$  با مقدار واقعی امکان بدون بعدسازی براساس گرانروی وجود دارد. گرانروی آب در شرایط تزریق نزدیک به ۱ cp گزارش شده و گرانروی نفت دارای بازه بسیار وسیع است که برای نفت سبک نزدیک به گرانروی آب اما بیشتر از آن و برای نفت سنگین تا چند ده هزار سانتی پویز گزارش شده است. در این تحقیق گرانروی آب ثابت حدود ۰/۸ cp فرض شده است و گرانروی نفت متغیر است. با تغییرات گرانروی نفت، نسبت تحرک پذیری فازهای آب و نفت ( $M$ ) نیز تغییر می یابد.

$$M = \frac{M_{water}}{M_{oil}} = \frac{K k_{rw} / \mu_w}{K k_{ro} / \mu_o} = \frac{k_{rw} \mu_o}{k_{ro} \mu_w} \quad (6)$$

که در آن  $K_{rw}$  و  $K_{ro}$  تراوایی نسبی آب و نفت و  $K$  تراوایی محیط است. از آنجایی که اثرات تراوایی نسبی فازها در این مطالعه صرف نظر شده است.

میزان اشغال شدگی  $p$  در مهندسی نفت معادل با نسبت خالص به ناخالص (NTG) است. حد آستانه یا  $p_c$  برای انواع شبکه پرکولاسیون مقادیر مشخص و ثابت دارد (جدول ۱) در مطالعه حاضر مخزن دوبعدی است و نواحی مخزنی با تعریف مدل مربعی شکل با قابلیت هم پوشانی تعریف می گردند، مقدار ثابت حد آستانه ( $p_c$ ) برابر ۰/۶۶۸ است. بقیه متغیرهای رابطه ۲ ثوابتی هستند که برای مسائل پرکولاسیونی دو بعد و سه بعد به شرح جدول ۲ هستند.

رابطه اصلی پرکولاسیون (رابطه ۲) یک رابطه کلی است که در آن متغیرهای محدود هندسی وجود دارد. به این ترتیب در میدانی که آب تزریق می گردد تأثیر تفاوت گرانروی آب و نفت در این رابطه مشاهده نمی شود. لذا وارد نمودن تأثیر مشخصات سنگ و سیال (از جمله تراوایی نسبی و گرانروی) باید به نحوی بر مبنای فیزیک مسئله، وارد روابط گردد [۱۷]. یک ایده برای وارد نمودن این متغیرها به رابطه ۲ استفاده از آن ها برای بدون بعد سازی پارامترهای رابطه است. برای بدون بعدسازی متغیرهای مخزنی و استفاده در مدل شبیه ساز از رابطه زمان بی بعد مبتنی بر جریان استفاده شده است. رابطه بی بعد پیشنهادی براساس رابطه دارسی برای جریان با هندسه شعاعی و خطی به فرم زیر است [۱۷].

$$t_s^{radial} = \frac{c_2 \phi p \mu r_s^2 \ln(r_s / r_w)}{K \Delta P (r / r_s)} \quad (3)$$

$$t_s^{linear} = \frac{c_1 \phi p \mu r_s^2}{K \Delta P (r / r_s)} \quad (4)$$

در این رابطه،  $t_s$  زمان عبور سیال از یک محیط تراوا و وابسته به هندسه جریان (خطی یا شعاعی) در نظر گرفته شده است. پارامترهای  $K$ ،  $\Delta P$ ،  $r_w$ ،  $r_s$ ،  $\mu$  پارامترهای

جدول ۲ ثوابت رابطه اصلی پرکولاسیون

ثوابت رابطه در دو بعد [۲۴]							
متغیر	N	$\varphi_2$	$\varphi_1$	g	$d_i$		
مقدار D ۲	$0.02 \pm 0.88$	۴	۷/۳	$0.1 \pm 2/2$	$0.005 \pm 1/13$		
ثوابت رابطه برای دو بعد و سه بعد [۱۶].							
	C	v	B	$\varphi_2$	a	$\varphi_1$	g
مقدار D ۲	$2/9$ ( $p < pc$ )		$2/3$	۲	$2/5$	$1/6$	$0.1 \pm 1/45$
مقدار D ۳	$1/6$ ( $p < pc$ ) $2/6$ ( $p > pc$ )	$1/33$	۵	۳	$1/1$	۳	$0.1 \pm 2$

لذا نسبت تحرک پذیری عمدتاً بیانگر نسبت ویسکوزیته دوفاز و با M نشان داده می شود. طی مطالعات انجام شده و نتایج شبیه سازی مشخص شد که رابطه تخمین برون زد براساس جریان خطی رابطه ۴ برای مدل هایی با اشغال شدگی (p) پایین دقت مناسبی دارد و رابطه تخمین برون زد براساس جریان هندسی رابطه ۳ برای مدل هایی با اشغال شدگی (p) بالا دقت مناسبی دارد [۱۹]. لذا رابطه پیشنهادی شکراله زاده برای تخمین زمان برون زد به صورت زیر است:

$$t_s = x t_s^{radial} + (1-x) t_s^{linear} \quad (7)$$

در این رابطه، متغیر x یک ضریب وزنی بین صفر و یک است. مقدار دقیق متغیر x در این بررسی برای هر حالت (مقادیر p مختلف) با استفاده از بهینه یابی تعیین گردید.

## نتایج و بحث و بررسی

### تهیه مدل استاتیک

در مرحله اول پیاده سازی رویکرد تراوشی لازم است ده ها مدل تصادفی استاتیک مخزن با ساختار تراوشی تهیه شوند. لذا در ابتدا بانک داده ای از مدل های استاتیک تراوشی تهیه شد. کلیه اطلاعات مربوط به این مدل ها در جدول ۳ ارائه شده است. ضخامت خالص به ناخالص<sup>۱</sup> برای کل مخزن برابر ۱ در نظر گرفته شد و بخش های مخزنی و غیر مخزنی با تفاوت در تخلخل و تراوایی از هم تفکیک شدند.

این مدل ها دوبعدی و متشکل از  $1 \times 200 \times 200$  گرید با اندازه  $10 \text{ m}^3$  هستند. سری های مختلف مدل های تراوشی با متغیرهای متنوع تهیه شد. با توجه به نیاز به تهیه هزاران مدل، این مرحله به استفاده از کدنویسی در محیط نرم افزار پترل<sup>۲</sup> با استفاده از بخش جریان کارها<sup>۳</sup> نرم افزار، به صورت خودکار اجرا گردید. این مدل سازی با اجرای دو حلقه مستقل شبیه سازی به دست آمد. مدل ها با سه فرض (الف) مدل های تصادفی با توزیع نرمال، (ب) امکان برقراری ارتباط بین چاه تزریقی و تولیدی و (ج) برای مقبولیت جامعه آماری تعداد ۱۵۰ مدل برای حالت پایه تهیه شد. شکل ۲ تعدادی از مدل های تخلخل و تراوایی مربوط به دو حالت ۵۰٪ و ۷۰٪ را در کنار نمودار اشغال شدگی نمایش می دهد.

در مرحله شبیه سازی جریان، یک حالت تولید-تزریق مشخص تعریف گردید. در این حالت، یک حلقه چاه تولیدی و تزریقی فرض گردید. چاه تولیدی در سلول (۵۰، ۵۰) و چاه تزریقی (۱۵۰، ۱۵۰) با نرخ تولید تزریق ۵۰ بشکه در روز جهت حفظ voidage ratio برابر ۱ در نظر گرفته شد. این حالت برای کلیه مدل های استاتیک یکسان فرض شده است. کلیه اطلاعات مربوط به خصوصیات دینامیک در جدول ۴ ارائه شده است.

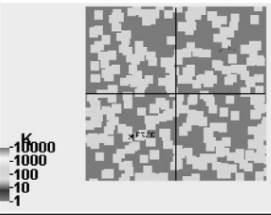
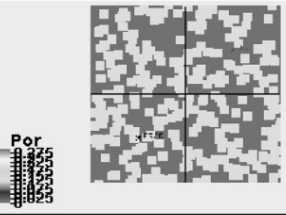
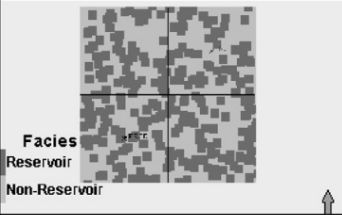

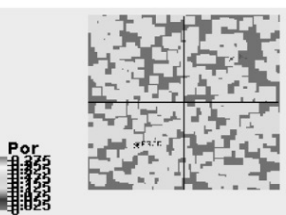
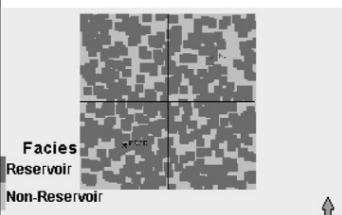
1. Net To Gross (NTG)

2. Petrel

3. Workflows

جدول ۳ مقادیر استفاده شده در مدل‌های تراوشی در حالت پایه (استاتیک)

متغیر	مقدار	واحد	رابطه جهت محاسبه
K	۵۰۰۰ و ۰ به ترتیب در بخش تراوا و غیر تراوا	D	$k = \frac{1e4\phi^3}{(1-\phi)^2}$
$\varphi$	۰/۲۵ و ۰ به ترتیب در بخش تراوا و غیر تراوا	%	تخصیص مقدار
NTG	۱	بدون بعد	تخصیص مقدار
گریدبندی	۱×۲۰۰×۲۰۰ گرید به ابعاد ۱۰ <sup>۳</sup>	m <sup>3</sup>	تعریف مدل استاتیک
نمودار k <sub>r</sub>	نمودار خطی تراوایی نسبی آب و نفت بدون اشباع باقی مانده		
حالت	یک چاه تولیدی در سلول (۵۰, ۵۰) و یک حلقه چاه تزریقی (۱۵۰, ۱۵۰) با نرخ تولید تزریق ۵۰ بشکه در روز جهت حفظ نسبت تخلیه <sup>۱</sup> برابر ۱		

P	نمایش تراوایی	نمایش تخلخل	نمایش اشغال‌شدگی
۵۰%	میانگن تراوایی = ۶۲mD 	میانگن تخلخل = ۱۰% 	تعداد کلاستر = ۳۴ 
۷۰%	میانگن تراوایی = ۷۸ mD 	میانگن تخلخل = ۱۴% 	تعداد کلاستر = ۱۵ 

شکل ۲ وضعیت تراوایی و تخلخل در تعدادی از مدل‌های استاتیک

1. Voidage Ratio



جدول ۴ مقادیر استفاده شده دینامیک در مدل های تراوشی

	متغیر	مقدار	واحد	رابطه جهت محاسبه
۱	$P_i$	۴۰۰۰	psi	تخصیص مقدار
۲	$T_i$	۱۷۰	$F^\circ$	تخصیص مقدار
۳	اشباع اولیه	$S_{oil} = 100, S_{gas} = 0, S_{water} = 0$	%	تخصیص مقدار
۴	$R_s$	۲۱۰	scf/stb	رابطه (Lasater 1958)
۵	شوری آب	۲۰۰۰۰۰	ppm	رابطه (McCain 1990)
۶	$B_o$	۱/۱۳	bbl/stb	
۷	$P_b$	۱۱۲۰	psi	تخصیص مقدار
۸	$\mu_o$	۱/۴۳ — ۰/۸	cp	
۹	$P_c$	۰	psi	تخصیص مقدار

۵ ارائه شده است.

جدول ۵ مقادیر به دست آمده در شبیه سازی مدل با نسبت های تحرک پذیری متفاوت بخش غیر مخزنی

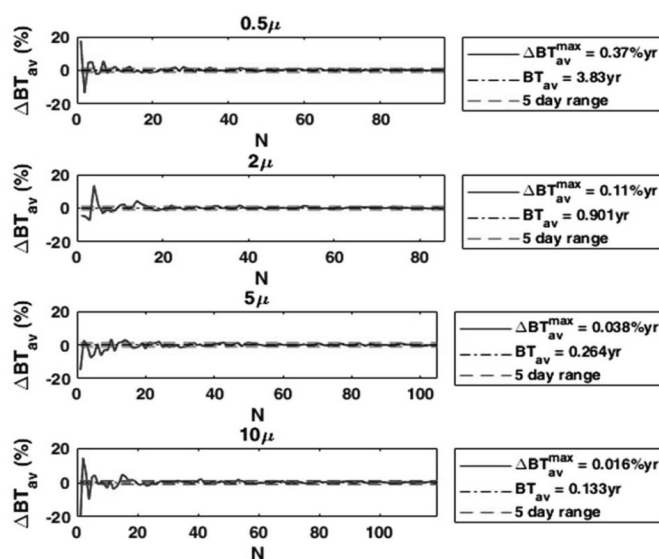
P	شرح مدل	زمان برون زد میانگین (سال)	تعداد مدل های شبیه سازی شده
۰/۶	$M = ۰/۵$	۳/۳۸	۹۷
	$M = ۱$	۲/۱۶	۱۳۳
	$M = ۲$	۰/۹۰۱	۸۶
	$M = ۵$	۰/۲۶۴	۱۰۵
	$M = ۱۰$	۰/۰۱۶	۱۱۹

**شکل ۳** تغییرات در میانگین زمان برون زد را در حالت های  $M = ۰/۵$  تا  $M = ۱۰$  نمایش می دهد. نمایش بازه ۵ روزه در این نمودارها تنها برای مقایسه است. در واقع این بخش از ۰/۵٪ زمان میانگین برون زد کل مجموعه شبیه سازی استفاده شده است. در صورت استفاده از بازه بزرگتر (برای مثال ۵ روز) امکان عدم شناسایی دقیق زمان برون زد وجود دارد. در **شکل ۴**، سه سری نمودار برای هر کدام از M ها رسم شده است. نمودار اول از سمت چپ هیستوگرام زمان برون زد است. نمودار وسط توزیع تجمعی احتمال زمان برون زد (CDF) و نمودار سمت راست نمودار چندک-چندک متناظر را نشان می دهد.

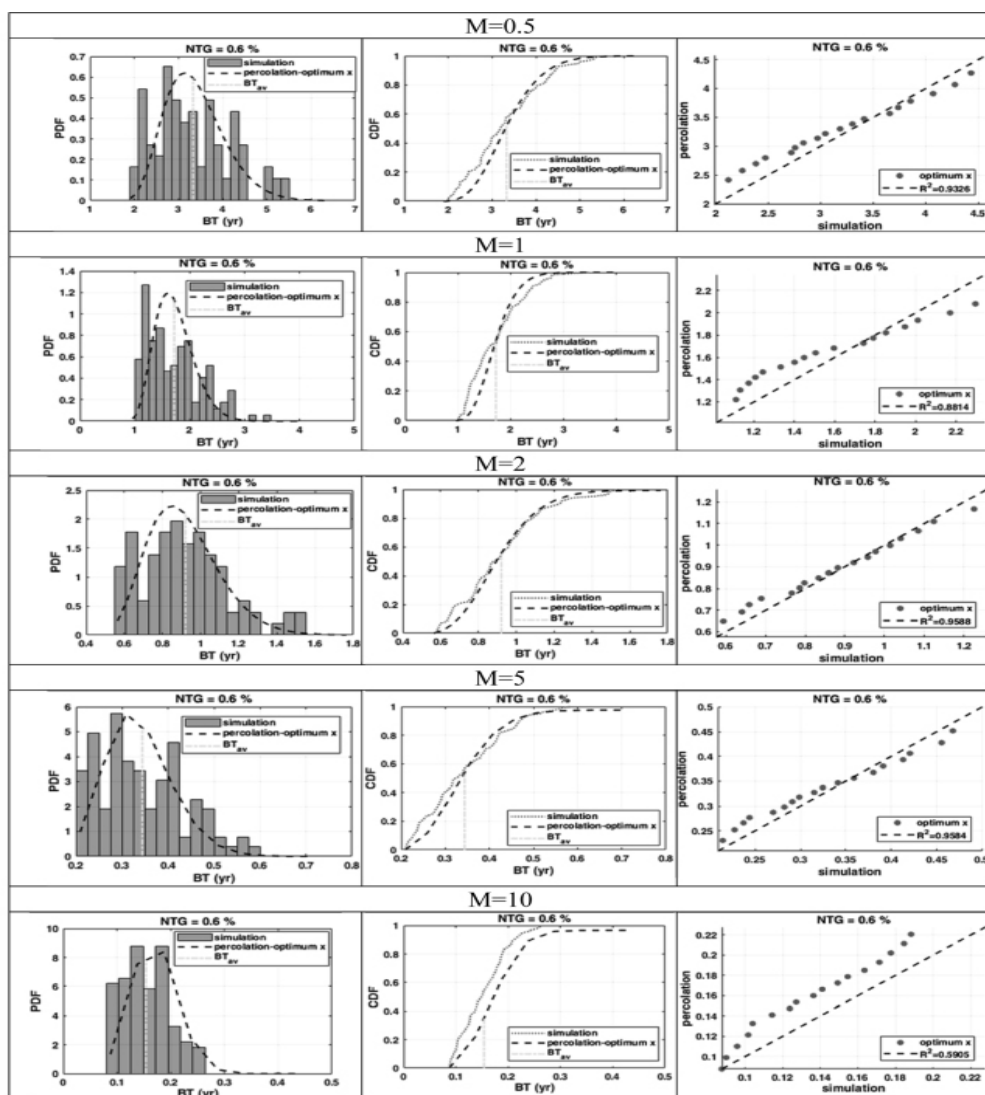
در ادامه، شبیه سازی عددی برروی کلیه مدل های استاتیک اجرا شد. این کار با قابلیت های موجود نرم افزار پیاده سازی شد. این کد برای یک مدل استاتیک مشخص، با تداخل و تراوایی تعیین شده، نمودارهای تراوایی نسبی و خصوصیات سیال مشخص، شرایط اولیه یکسان و حالت تولید و تزریق از پیش تعیین شده، یک حالت شبیه سازی یا "Case" جدید تعریف می کند. سپس با فراخوانی نرم افزار Eclipse-E100، روابط جریان در محیط نرم افزار مذکور به صورت Black oil حل می کند. پس از پایان شبیه سازی برروی یک حالت، صفحه اجرای اکلیپس بسته شده و مراحل ساختن حالت تولیدی جدید و شبیه سازی برروی مدل استاتیک بعدی به صورت خودکار شروع می شود.

#### اجرای مدل دینامیک و محاسبه زمان برون زد

برای تعیین تعداد کافی مدل استاتیک، تغییرات میانگین زمان برون زد بررسی شد. با در نظر گرفتن شرط های سه گانه ۳۰۰ مدل برای یک مقدار اشغال شدگی مشخص ( $۰/۶ = p$ ) مشخص شبیه سازی شده و میانگین زمان برون زد این ۳۰۰ مدل برابر ۵۰۰ روز است، لذا ۲/۵ روز به عنوان معیار سنجش کفایت تعداد مدل ها انتخاب شد. نتایج تغییرات نسبت گرانیروی در این حد اشغال شدگی در **جدول**



شکل ۳ تغییرات در میانگین زمان برون زد به منظور تعیین تعداد مدل های کافی با تغییر نسبت گرانروی برای  $p=0.6$



شکل ۴ مقایسه زمان برون زد در مدل با درجه اشغال شدگی  $p=0.6$ . با نتایج شبیه سازی و رابطه پرکولاسیون برای زمانی که نسبت گرانروی  $M=0.5$ ,  $M=1$ ,  $M=2$ ,  $M=5$  و  $M=10$  است

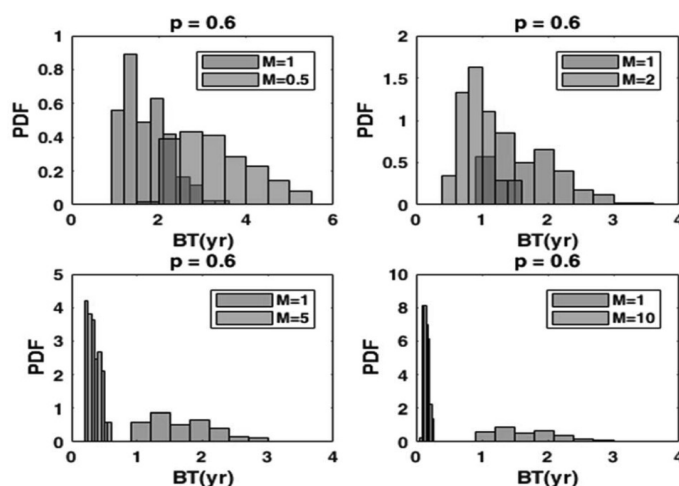
مناسب رابطه پرکولاسیون به دست آمده براساس بدون بعدسازی مناسب را نشان می‌دهد. علاوه بر مقایسه رابطه پرکولاسیون با نتایج شبیه‌سازی عددی، موضوع دیگری نیز مورد بررسی قرار گرفت. این موضوع تغییرات در زمان برونزد برای حالات مختلف  $M$  بود. به این منظور هیستوگرام مربوط به زمان برونزد برای مقادیر متفاوت  $M$  در شکل ۵ رسم شده است. در هر کدام از منحنی‌های این شکل، هیستوگرام حالت  $M \neq 1$  در کنار هیستوگرام حالت  $M=1$  رسم شده است. این منحنی نشان می‌دهد:

- ۱- هیستوگرام زمان برونزد برای مدل‌های نزدیک به آستانه پرکولاسیون (حالت  $p=0.6$ ) و با گرانی‌های مختلف، با افزایش گرانی‌های نفت، میانگین زمان برونزد کاهش می‌یابد.
- ۲- نمودار توزیع احتمالی با افزایش  $M$  باریک‌تر و بلندتر شده است که نشان می‌دهد.

در هر کدام، نمودار زمان برونزد حاصل از شبیه‌سازی عددی در کنار پیش‌بینی به دست آمده از رابطه پرکولاسیون رابطه ۲ رسم شده است. در رسم این نمودارها برای بدون بعدسازی از رابطه بهینه رابطه ۷ استفاده شده است. گرانی‌های سیال در قالب  $M$  یکی از متغیرهای رابطه ۵ است. لذا، نسبت گرانی‌های استفاده شده در شبیه‌سازی عددی به این طریق در محاسبات رابطه پرکولاسیون مؤثر بوده است. در واقع اینجا به منظور بدون بعدسازی متغیرهای رابطه ۲، نسبت  $M$  وارد روابط شده است. در این بخش تنها با قرار دادن مقدار گرانی جدید در رابطه ۵ و استفاده از آن با رابطه ۷ برای بدون بعدسازی رابطه ۲، نمودار پرکولاسیون به دست آمده است. مقایسه سطح خطای این دو رویکرد در جدول ۶ خلاصه شده است. نمودارهای نشان داده شده در شکل ۴ و بررسی مقادیر خطا در جدول ۶ تطابق

جدول ۶ خطای پیش‌بینی از رویکرد پرکولاسیون در مقایسه با نتایج شبیه‌سازی برای مقادیر مختلف  $M$

P	شرح مدل	مقدار $x$	خطای پیش‌بینی نمودارهای Quantile-Quantile
۰/۶	$M=0.5$	.	۰/۹۳۲۶
	$M=1$	.	۰/۸۸۱۴
	$M=2$	.	۰/۹۵۸۸
	$M=5$	.	۰/۹۵۸۴
	$M=10$	.	۰/۵۹۰۵



شکل ۵ مقایسه توزیع زمان برونزد حاصل از شبیه‌سازی برای مقادیر مختلف  $M$  در مقایسه با حالت  $M=1$  برای شرایط نزدیک به آستانه تراوش  $p=0.6$

تاثیر قرار داده و به رفتار سیستم‌های همگن نزدیک شود. در بقیه حالات روش پرکولاسیون پیش‌بینی مناسبی داشته است. مشابه همین شبیه‌سازی برای حالت اشغال‌شدگی برابر با  $0/8$  انجام شد. که به منظور جلوگیری از طولانی شدن متن از ذکر جزئیات خودداری می‌شود. با رسم نمودارهای لگاریتمی زمان‌برون‌زد بدون بعد برحسب نسبت گرانروی، امکان برازش خط با تقریب مناسب وجود دارد. اما این خط هم‌تا نبوده و برای  $p = 0/6$  و  $0/8$   $p = 0$  متفاوت است. از آنجا که ارتباط زمان‌برون‌زد میانگین با توان سوم  $p$  مشخص می‌کند، در اینجا با استفاده از این تقریب نمودارهای مربوطه رسم شد. به این ترتیب، اول زمان‌برون‌زد به‌دست آمده از شبیه‌سازی با تقسیم بر مقدار  $t_s$  مربوطه نرمالایز شد و در نهایت در  $p^3$  ضرب و براساس  $M$  رسم گردید. براساس شکل ۶ می‌توان نتیجه‌گیری نمود زمان مشخصه مناسب در رابطه مقیاس‌بندی زمان‌برون‌زد علاوه‌بر وابستگی به درجه اشغال‌شدگی به نسبت گرانروی دو سیال تزریقی و تولیدی  $M$  هم وابسته است. رابطه توصیف‌کننده این وابستگی براساس نتایج حاصل شده در نسبت‌های گرانروی مختلف از **شکل ۶** رابطه توانی و با توان  $1/3$  را نشان می‌دهد.

$$t_{br} = f(t_s, p^{-3}, M) \quad (8)$$

از رابطه فوق می‌توان برای پیش‌بینی میانگین زمان‌برون‌زد برای مدل‌هایی با مقادیر غیر از مقادیر گزارش شده در این مطالعه استفاده نمود.

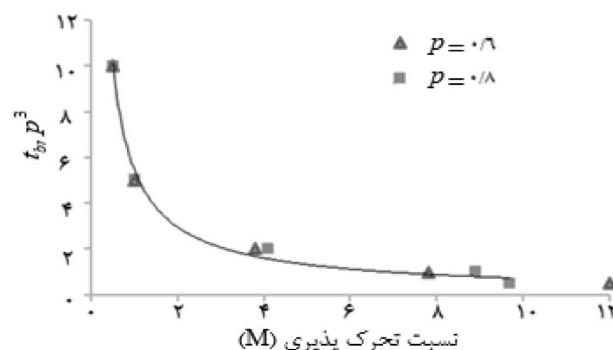
با افزایش نسبت گرانروی ساختار جریان‌ی به مدل همگن نزدیک شده است.

۳- با کاهش گرانروی ساختار جریان‌ی به مدل تصادفی نزدیک‌تر می‌شود. بر این اساس و با توجه به اینکه استفاده از روش پرکولاسیون برای مدل همگن روشی مناسب نیست می‌توان توجیه نمود که خطای پیش‌بینی، زمانی که  $M = 10$  است خطای بالایی ( $R^2 \sim 0/6$ ) دارد. در بقیه حالات روش پرکولاسیون پیش‌بینی مناسبی داشته است.

نتایج فوق برای مدل‌های با درجه اشغال‌شدگی بالاتر از آستانه پرکولاسیون (نزدیک به مدل‌های همگن با مقدار  $p = 0/8$ ) نیز تکرار شد. این نتایج نشان داد یافته‌های مربوط به قبل از حد آستانه برای مقادیر بالای  $p$  نیز قابل قبول هستند. یعنی: ۱- با افزایش گرانروی نفت، میانگین زمان‌برون‌زد کاهش می‌یابد.

۲- نمودار توزیع احتمالی با افزایش  $M$  باریک‌تر و بلندتر شده است. این موضوع برای  $p$  بالاتر از حد آستانه شدیدتر است. با افزایش نسبت گرانروی ساختار جریان‌ی به مدل همگن نزدیک شده است. با کاهش گرانروی ساختار جریان‌ی به مدل تصادفی نزدیک‌تر می‌شود.

مقادیر خطای پیش‌بینی زمان‌برون‌زد نسبتاً بالایی در حالت نسبت تحرک‌پذیری بالا ( $M = 10$ ) از **جدول ۶** دیده می‌شود ( $R^2 \sim 0/6$ ) که می‌تواند با اثرات انگشتی شده (fingering) رفتار محیط تراوش را تحت



شکل ۶ تغییرات در میانگین زمان‌برون‌زد با تغییرات در نسبت تحرک‌پذیری سیالات

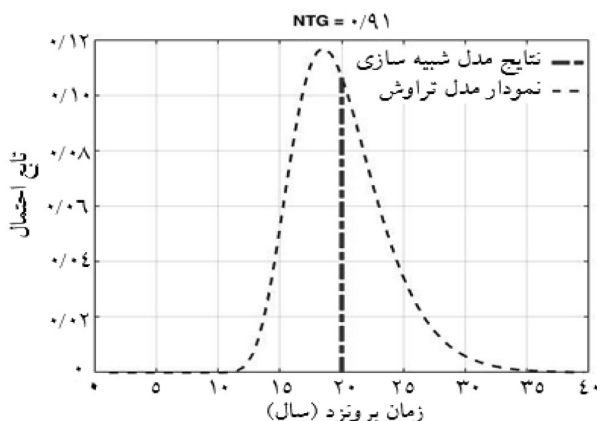
## مطالعه موردی در یک مخزن واقعی

در ادامه این مطالعه و به منظور اعتبارسنجی نتایج رویکرد پیشنهادی در پیش‌بینی زمان‌برونزد یک مخزن واقعی انتخاب و برش‌های دوبعدی از آن در جهت‌های مختلف تهیه گردید. روش تبدیل نقشه مخزنی به مدل تراوش با در نظر گرفتن یک مقدار مناسب آستانه بر داده‌های تراوایی مخزن (به‌طوری‌که اتصال بین چاه‌ها فراهم باشد) در نظر گرفته شد. بدین ترتیب گریدهای با مقدار تراوایی کم‌تر از مقدار آستانه غیرمخزنی (تراوایی صفر) و گریدهای با تراوایی بیشتر گریدهای مخزنی محسوب شده و لذا مدل مخزن به ساختار تراوشی

تبدیل گردید. از بین چاه‌های موجود، دو چاه به‌عنوان چاه‌های تزریقی و تولیدی در نظر گرفته و فعال شد. سایر اطلاعات مربوط به شبیه‌سازی مخزن مانند افت فشار بین دوچاه و ابعاد ناحیه شبیه‌سازی شده و فاصله بین دو چاه در **جدول ۷** خلاصه شده است. سپس با اجرای شبیه‌سازی با نرم‌افزار جریان زمان‌برونزد محاسبه شد و با مقدار پیش‌بینی شده رابطه تعمیم داده شده زمان‌برونزد بر پایه پرکولاسیون (روابط ۲ و ۸) مقایسه گردید. زمان‌برونزد در مخزن حدود ۲۰ سال است و در بازه قابل قبول پیش‌بینی روش پرکولاسیون براساس **شکل ۷** قرار می‌گیرد.

جدول ۷ اطلاعات مربوط به شبیه‌سازی مخزن

$\phi$	$p\Delta$	$K_s$	$r_s$	$p_c$	$r$	$p$	$L$	$t_{br}$
%	psi	md	m	-	m	-	m	day
۷	۲۶۰۰	۱۰۰	۴۴۳	۰/۶۳۳	۶۳۵۲	۰/۹۱	۱۱۵۲۵	۷۳۰۵



شکل ۷ مقایسه زمان‌برونزد در مخزن واقعی با نمودار توزیع زمان‌برونزد براساس روابط ۸ و ۲

## نتیجه‌گیری

در این مطالعه از رویکرد پرکولاسیون برای پیش‌بینی زمان‌برونزد سیال تزریقی به مخازن نفتی استفاده شد. به‌طور خاص با تعمیم رابطه کلی برای تخمین زمان‌برونزد بر پایه پرکولاسیون با استفاده از رویکرد بی‌بعد سازی بر مبنای زمان مشخصه بی‌بعد با استفاده از رابطه داریسی با هدف در نظر گرفتن اثر نسبت گرانیوزی فازها استفاده

شد. در این کار برای ۳۰۰ مدل مختلف مخزن به‌عنوان مدل‌های تراوشی با سیالات با گرانیوزی مختلف شبیه‌سازی جریان انجام شد. در رابطه اولیه زمان‌برونزد بر پایه پرکولاسیون فرض برابر بودن گرانیوزی سیال درجا و سیال تزریقی وجود داشت که به‌عنوان مدل پایه در این مطالعه در نظر گرفته شد. به منظور بررسی اثر نسبت گرانیوزی دو فاز، تعدادی از شبیه‌سازی‌ها با تغییر این نسبت

دو فاز به فرم یک رابطه توانی با توان  $1/3$  دارد. لذا با در نظر گرفتن این وابستگی توانی برای نسبت گرانروی دوفاز و با شبیه‌سازی یک مخزن واقعی و مقایسه نتایج زمان‌برونزد در آن کارایی تابع توزیع زمان‌برونزد مورد ارزیابی قرار گرفت. نتایج نشان می‌دهد که این رویکرد زمینه به‌کارگیری رابطه را برای مخازن واقعی میسر نموده است

به مقدار بیشتر و کمتر از یک انجام گرفت و زمان‌برونزد در آنها محاسبه گردید. در ادامه نمودارهای هیستوگرام به‌دست آمده از شبیه‌سازی با رابطه پرکولاسیون مقایسه گردید و رابطه تعمیم داده شده برای پیش‌بینی زمان‌برونزد برای مخازنی با نسبت گرانروی  $10/5$  تا  $10$  بررسی شد. نتایج نشان داد زمان مشخصه مناسب در رابطه مقیاس‌بندی زمان‌برونزد وابسته به نسبت گرانروی

## مراجع

- [1]. Sahimi M (1994) Applications of Percolation Theory, CRC Press.
- [2]. King P, Masihi M (2018) Percolation theory in reservoir engineering, Published by World Scientific, 300, 978-1-78634-523-3.
- [3]. Flory P J (1941) Molecular size distribution in three dimensional polymers, Journal of the American Chemical Society, 63, 11: 3083-3090.
- [4]. Broadbent S R, Hammersley J M (1957) Percolation processes, Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society, 629-641.
- [5]. Selyakov V I, Kadet V V (1996) Percolation models for transport in porous media with applications to reservoir engineering, Springer.
- [6]. King P R, Buldyrev S V, Dokholyan N V, Havlin S, Lopez E, Paul G, Stanley H E (2002) Using percolation theory to predict oil field performance, Physica, A314: 103-108.
- [7]. Chandler R, Koplik J, Lerman K, Willemsen J F (1982) Capillary displacement and percolation in porous media, Journal of Fluid Mechanics, 119: 249-267.
- [8]. Lenormand R, Bories S (1980) Description d'un mécanisme de connexion de liaison destiné à l'étude du drainage avec piégeage en milieu poreux, Comptes Rendus Hebdomadaires Des Séances De L'Académie Des Sciences, 279-291.
- [9]. Wilkinson D, Willemsen J F (1983). Invasion percolation: a new form of percolation theory, Journal of Physics A: Mathematical and General, 16: 3365-3376.
- [10]. Chayes J T, Chayes L, Newman C M (1985) The stochastic geometry of invasion percolation, Communications in Mathematical Physics, 101: 383-407.
- [11]. Bak P, Tang C, Wiesenfeld K (1987) Self-Organized Criticality: an explanation of  $1/f$  noise, Physical Review Letters, 59, 4: 381-384.
- [12]. Dickman R, Munoz M A, Vespignani A, Zapperi S (2000), Paths to self-organized Criticality, Brazilian Journal of Physics, 30, 1: 27-39.
- [13]. Dhar D (2017) Self-tuning to the critical point: invasion percolation, Journal of Physics A: Mathematical and Theoretical.
- [14]. Masihi M, R Shams, PR King (2022) Pore level characterization of Micro-CT images using percolation theory, Journal of Petroleum Science and Engineering, 110113.
- [15]. Rui G, Xin W, Mingguang C, Bo C, Chunming H (2017) The fractures optimization method with the threshold pressure of multistage fracturing in tight oil reservoir, In SPE Reservoir Characterisation and Simulation Conference and Exhibition. OnePetro.
- [16]. Andrade J S, Buldyrev S V, Dokholyan N V, Havlin S, King P R, Lee Y, Paul G, Stanley H E (2000) Flow between two sites on a percolation cluster, Physical Review, E 62, 6: 1-31.
- [17]. King P R, Buldyrev S V, Dokholyan N V, Havlin S, Lopez E, Paul G, Stanley H E (2002) Percolation Theory, London Petrophysical Society.
- [18]. Ganjeh-Ghazvini M, Masihi M, Ghaedi M (2014) Random walk-percolation based modeling of two phase flow in porous media: breakthrough time and net to gross ratio estimation, Physica A, 406: 214-221.
- [19]. Shokrollahzadeh S, Masihi M, M Ghazanfari H, King P (2019) Effect of characteristic time on scaling of breakthrough time distribution for two-phase displacement in percolation porous media, Transport in Porous Media, 130, 3: 889-902.
- [20]. Sadeghnejad S, Masihi M, Pishvaei M, Shojaei A, King P R (2014) Estimating connected volume of hy-



drocarbon during early reservoir life by percolation theory, Energy Sources, Part A: Recovery, Utilization, and Environmental Effects, 36, 3: 301-308.

[21]. Sadeghnejad S, Masihi M (2016) Point to point continuum percolation in two dimensions, Journal of Statistical Mechanics, Theory and Experiment, 10: 103210.

[22]. Sadeghnejad S, Masihi M (2017) Analysis of a more realistic well representation during secondary recovery in 3-D continuum models, Computational Geosciences, 21, 5-6: 1035-1048.

[23]. Sadeghnejad S, Masihi M (2011) Water flooding performance evaluation using percolation theory, Iranian Journal of Petroleum Science and Technology, 2: 19-23.

[24]. Dokholyan N V, Lee Y, Buldyrev S V, Havlin S, King P R, Stanley H E (1999) Scaling of the distribution of shortest paths in percolation, Journal of Statistical Physics, 93, 3: 603-613.

# بررسی اثر جریان مارانگونی و چینش مولکولی در پایداری فوم ایجاد شده توسط نانوذرات - مطالعه آزمایشگاهی

فاطمه رئیسی<sup>۱</sup>، مریم خسروی<sup>۲\*</sup>، بهزاد رستمی<sup>۱</sup>، حمید وطن پرست<sup>۲</sup> و علیرضا فتح اللهی<sup>۱</sup>

۱- انستیتو مهندسی نفت، دانشکده مهندسی شیمی، دانشگاه تهران، تهران، ایران

۲- پژوهشکده مهندسی نفت، پردیس توسعه صنایع بالادستی نفت، پژوهشگاه صنعت نفت، تهران، ایران

تاریخ دریافت: ۱۴۰۰/۱۰/۰۴ تاریخ پذیرش: ۱۴۰۱/۰۲/۱

## چکیده

استفاده از نانو ذرات به همراه سورفکتانت برای تولید و پایدار کردن فوم می‌تواند باعث رفع محدودیت‌های استفاده از سورفکتانت شود و پایداری فوم را به میزان قابل توجهی افزایش دهد. هدف اصلی مطالعه حاضر بررسی و پیدا کردن نحوه چینش نانوذرات و مولکول‌های سورفکتانت در سطح تماس و تأثیر جریان مارانگونی در پایداری فوم در حضور نانوذرات است. در این مطالعه، آزمایشات برای دو سیستم فوم مختلف: (۱) نانوذرات آنیونی-سورفکتانت کاتیونی (CTAB) و (۲) نانوذرات آنیونی-سورفکتانت آنیونی (SDS) انجام شدند. برای تعیین چینش مولکول‌های سورفکتانت و نانوذرات در سطح تماس و فیلم مایع و تعیین اثر مارانگونی نتایج این آزمایش‌ها با آزمایش‌های پایه متناظر در غیاب نانوذرات مقایسه شدند. مشاهدات نشان می‌دهند اگرچه حضور نانوذرات باعث افزایش پایداری فوم در هر دو سیستم می‌شود، اما مکانیسم‌های موثر در پایداری سیستم‌ها متفاوت هستند. براساس مشاهدات، حضور نانوذرات در سیستم فوم SDS (همبار) باعث افزایش فوم‌زایی و پایداری فوم می‌شود، اما در سیستم فوم CTAB (ناهمبار) علی‌رغم کاهش فوم‌زایی، پایداری فوم افزایش می‌یابد. بنابر مشاهدات ذکر شده در سیستم همبار مؤثرترین عامل در پایداری فوم، نیروهای دافعه هستند که مولکول‌های سورفکتانت بیشتری را به سطح تماس ارسال می‌کنند. تحلیل نتایج کشش سطحی نشان داد در این سیستم جریان مارانگونی با اثر منفی تخلیه مایع در اثر گرانش مقابله می‌کند و باعث پایداری فوم می‌شود. از سوی دیگر در سیستم ناهمبار حضور نانوذرات در سطح تماس با کاهش نفوذ مولکولی و افزایش انرژی جدا کردن ذرات باعث افزایش پایداری فوم می‌شود. حضور نانوذرات در سطح تماس آن را به یک سطح جامد مانند تبدیل می‌کند و به علت الاستیسته بالای سطح جریان مارانگونی اتفاق نمی‌افتد.

کلمات کلیدی: نانوذرات، پایداری فوم، فوم‌زایی، اثر مارانگونی، چینش مولکولی

## مقدمه

تزریق گاز یکی از رایج‌ترین و مرسوم‌ترین تکنیک‌های ازدیادبرداشت نفت است، اما به دلیل تحرک بالای فاز گاز (و در نتیجه، پدیده‌ی انگشتی شدن، کانال‌زنی و بالاروی ثقلی<sup>۱</sup>) بازده نسبتاً پایینی دارد. تزریق فوم راه حل پیشنهادی برای بهبود تحرک‌پذیری گاز است. فوم از طریق کاهش تراوایی نسبی گاز به وسیله به دام انداختن گاز و نیز افزایش گرانروی مؤثر گاز، سبب کاهش تحرک‌پذیری گاز و کاهش جدایش ثقلی می‌شود اما، این روش با چالش پایداری مواجه است. به همین منظور، مطالعات گسترده‌ای برای افزایش پایداری فوم و عوامل مؤثر بر آن شامل اثر گرانش، اثر مارانگونی، نفوذ مولکولی، فشار جدایش، فشار موئینگی و اثر نفت انجام شده است. در چند دهه اخیر یکی از راه‌های پیشنهادی برای افزایش پایداری فوم استفاده از نانوذرات برای افزایش پایداری است. تمرکز اصلی این مطالعه بررسی اثر مارانگونی در حضور نانوذرات، و قرارگیری مولکول‌های سورفکتانت و نانوذرات در سطح تماس، در پایداری فوم است [۸-۱]. اثر مارانگونی برای اولین بار توسط وبر برای پدیده اشک شراب مورد بررسی قرار گرفت. او ادعا کرد این پدیده به علت گرادیان تنش میان رویه اتفاق می‌افتد. در اصل، جریان همرفتی سیالات از نقطه‌ای با کشش سطحی کم تا نقطه‌ای با کشش سطحی بالا را جریان مارانگونی می‌نامند. مطالعات نشان داده‌اند در سیستم فوم، هنگام تخلیه مایع از یک فیلم به علت حرکت فیلم مایع به سمت مرز مسطح و اختلاف فشار موئینگی، فیلم در یک منطقه نازک می‌شود و باعث افزایش سطح حباب می‌شود. بنابراین در قسمت وسط فیلم نسبت به مرز مسطح غلظت سورفکتانت کمتر است، در نتیجه یک جریان از مرز مسطح به سمت وسط فیلم (عکس جریان در تخلیه فیلم مایع) در سطح مایع اتفاق می‌افتد که سرعت تخلیه را پایین می‌آورد [۹ و ۱۰].

تأثیر دیگر مارانگونی هنگامی است که حباب به دلایل مختلف کشیده می‌شود و یک افزایش سطح اتفاق می‌افتد. بنابراین، غلظت سورفکتانت در برخی قسمت‌های حباب کم می‌شود، پس مارانگونی باعث حرکت سورفکتانت روی سطح حباب و برگرداندن حباب به شکل اولیه‌اش و در نتیجه پایداری فوم می‌شود. مطالعات بررسی اثر مارانگونی در فوم نشان داده است اگرچه جریان مارانگونی باعث کاهش تخلیه فیلم مایع می‌شود اما میزان تأثیر آن وابسته به گرادیان کشش سطحی و ویسکوزیته سطحی حباب متفاوت است و در گرادیان کشش سطحی بالاتر و ویسکوزیته سطحی کمتر جریان مارانگونی تأثیر به سزاتری در پایداری فوم ایفا می‌کند [۱۱ و ۱۰]. تحقیقات نشان داده است که یکی از مؤثرترین راه‌ها برای تثبیت کف استفاده از نانوذرات است. موهانتی یک مطالعه تجربی جهت بررسی فوم پایدار شده توسط سورفکتانت-نانوذرات انجام داد. نتایج آزمایشات نشان داد که در حضور نانوذرات، نیمه عمر فوم و ضریب بازیافت نفت به طرز چشم‌گیری افزایش می‌یابد و همچنین در سیستم‌هایی که نانوذرات به سطح تماس گاز و مایع جذب می‌شوند، مقدار قابل توجهی انرژی برای حذف ذرات از سطح مورد نیاز است و این انرژی، انرژی جداسازی<sup>۲</sup> نامیده می‌شود. همچنین مطالعات نشان داده است در برخی سیستم‌های فوم حضور نانوذرات در سطح تماس به علت تغییر خواص سطحی باعث افزایش چشم‌گیر پایداری فوم می‌شود و در برخی از سیستم‌ها برخلاف عدم حضور نانوذرات در سطح تماس، پایداری فوم افزایش می‌یابد [۱۲-۱۷]. همان‌طور که گفته شد، مطالعات متعددی برای تعیین تأثیر نانوذرات بر پایداری فوم انجام شده است. با این حال، مطالعات کمی رفتار فوم را در سیستم‌های همبار و ناهمبار به‌طور هم‌زمان بررسی کرده‌اند.

1. Gravity Override

2. Detachment Energy

برمید (CTAB) با درجه خلوص بیش از ۹۷/۷٪ و سدیم دودسیل سولفات (SDS خلوص <۹۹/۶۹۶) به ترتیب به عنوان سورفکتانت کاتیونی و آنیونی استفاده شدند. نانوذرات آب دوست سیلیکا ( $\text{SiO}_2$ ) به قطر میانگین ۱۲ تا ۱۴ nm که از شرکت نانو صدرا تهیه شدند به عنوان پایدارکننده فوم به کار رفتند. از آب مقطر جهت پراکنده ساختن سورفکتانت و نانوذرات استفاده شد.

#### آماده سازی محلول

به منظور به حداقل رساندن خطا، ۱۰۰ g محلول حاوی ۵ CMC سورفکتانت تهیه شده، سپس به غلظت های مورد نظر رقیق شد و همچنین به منظور جلوگیری از تشکیل ترکیب جدید به علت در معرض رطوبت قرار گرفتن سورفکتانت، روزانه قبل از انجام آزمایشات محلول جدیدی ساخته می شد. در ابتدا، سورفکتانت با استفاده از ترازوی دیجیتالی با دقت ۵ رقم اعشار وزن شد. پس از آن، آب مقطر به آرامی و با استفاده از یک پیپت کالیبره اضافه شد. در مرحله بعدی برای پراکنده شدن سورفکتانت در فاز آبی، محلول در حمام اولتراسونیک به مدت ۱ h ۲-۳ قرار داده شد. طبق محاسبات، به منظور تهیه غلظت مد نظر به چند گرم از محلول ۵ CMC، آب مقطر اضافه می شد و سپس محلول آماده شده مجدداً به مدت ۴۵ min در حمام اولتراسونیک قرار داده شد. به منظور تهیه محلول حاوی نانوذرات روش مشابهی اعمال شد و تنها به جای حمام اولتراسونیک از اولتراسونیک پروب دار (۴۰۰-UHP- شرکت پژوهش گران نانو فن آوری) به مدت ۱ h استفاده شد.

بنابراین، این مطالعه با دیدگاهی جدید طراحی شده است تا با بررسی فوم زایی، پایداری فوم و کشش سطحی در حضور و عدم حضور نانوذرات بینشی از آرایش نانوذرات در لاملا ارائه دهد. لازم به ذکر است به علت جای خالی بررسی اثر مارانگونی بر پایداری فوم حاوی نانوذرات در مطالعات انجام شده، در این مقاله با مشاهده تغییر کشش سطحی با غلظت نانوذرات تأثیر جریان مارانگونی بر پایداری فوم در حضور نانوذرات مشخص می گردد.

#### طراحی آزمایشات

به منظور بررسی چینهش نانوذرات و مولکول های سورفکتانت در فیلم مایع و سطح تماس، آزمایشات استاتیک (به منظور اندازه گیری فوم زایی و پایداری فوم) و کشش سطحی در حضور و عدم حضور نانوذرات انجام شدند و به منظور بررسی اثر مارانگونی گرادیان آزمایش های کشش سطحی در حضور نانوذرات مورد بررسی قرار گرفتند. آزمایشات راس میلز (آزمایش استاتیک) و اندازه گیری کشش سطحی برای چهار سری ذکر شده در **جدول ۱** انجام شد. در این جدول حضور دو نوع سورفکتانت آنیونی و کاتیونی مورد استفاده و نانوذرات در هر سری آزمایش مشخص می شود. علامت تیک به منزله حضور ماده مورد نظر در آن سری از آزمایشات است.

#### مواد استفاده شده

از دو نوع سورفکتانت به عنوان عامل ایجادکننده فوم استفاده شده است. هگزا دسیل تری متیل آمونیم

جدول ۱ جدول سری های آزمایشات

نانوذرات	سورفکتانت هگزا دسیل تری متیل آمونیم برمید	سورفکتانت سدیم دودسیل سولفات	شماره سری
-	-	☑	۱
-	☑	-	۲
☑	-	☑	۳
☑	☑	-	۴

به اهداف مورد نظر انجام شد. مقدار cc ۵۰ از محلول‌ها در بشر ریخته شده و پس از ۲۰ min در دستگاه سیگما قرار داده شدند و در نهایت، عددی که دستگاه به آن همگرا شد به عنوان عدد کشش سطحی ثبت شد.

### ارائه و تحلیل نتایج

همان‌طور که در قسمت قبل ذکر شد، دو دسته آزمایش صورت گرفت: ۱) آزمایشات استاتیک که از طریق این آزمایش‌ها، ارتفاع (قابلیت فوم‌زایی) و نیمه عمر فوم (پایداری) اندازه‌گیری شد. ۲) براساس نتایج آزمایشات استاتیک، آزمایش‌های کشش سطحی در چندین غلظت انتخابی انجام شدند. در ادامه به بررسی و تحلیل نتایج می‌پردازیم. در ابتدا، آزمایشات استاتیک برای هر دو سورفکتانت، در غیاب نانوذرات انجام شد. در غلظت‌های مختلف سورفکتانت از CMC ۵/۰ تا CMC ۲، ارتفاع فوم و نیمه‌عمر ثبت شدند. براساس شکل ۱ نمودار نیمه‌عمر فوم براساس ارتفاع فوم در غلظت‌های مختلف سورفکتانت برای هر دو مورد صعودی و کاملاً خطی است ( $R^2 \sim 1$ ) که این نتایج با مطالعات صورت‌گرفته مطابقت دارد و صحت آزمایش‌ها را تأیید می‌کند [۲۰]. همان‌طور که در شکل ۲ مشخص است، هنگامی که غلظت سورفکتانت افزایش می‌یابد و به علت حضور مولکول‌های سورفکتانت بیشتر در سطح تماس، کشش سطحی کاهش یافته و پایداری فوم افزایش می‌یابد که به‌طور کامل با نتایج آزمایشات استاتیک مطابقت دارد. در مرحله بعد به‌منظور بررسی اثر نانوذرات و تعیین آرایش ذرات در سطح تماس، دو یا سه غلظت از هر سورفکتانت انتخاب شد. برای هر دو سورفکتانت، یکی از غلظت‌های انتخابی بیشتر از CMC ۱ بود. در هر غلظت سورفکتانت، غلظت‌های مختلفی از نانوذرات اضافه شد. در شکل ۳ نیمه‌عمر فوم براساس ارتفاع فوم برای سری‌های یک و سه رسم شده است

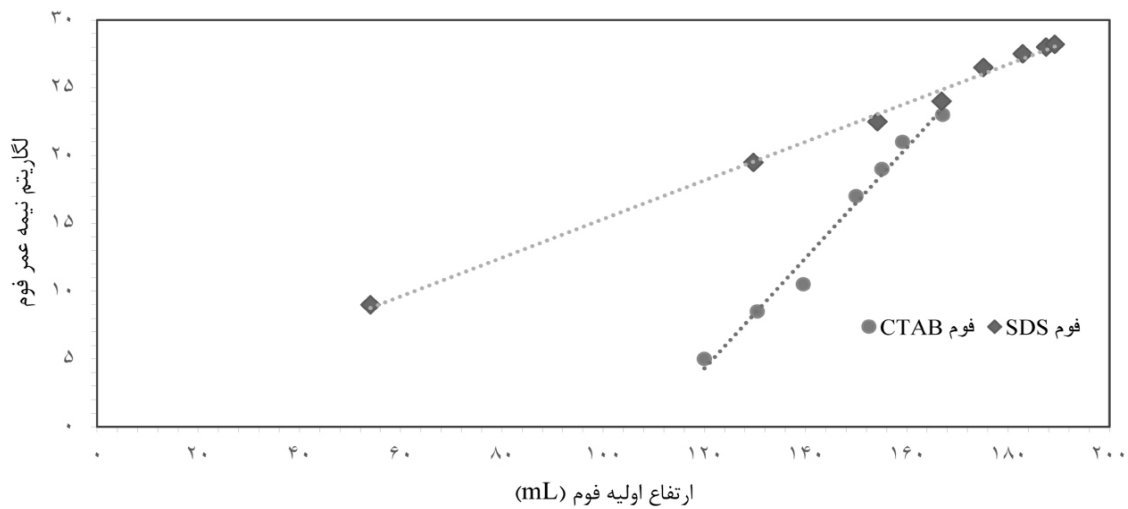
به‌منظور ترکیب کردن محلول‌های حاوی نانوذرات و سورفکتانت، محلول حاوی سورفکتانت روی استیرر مغناطیسی قرار داده شده و سپس محلول حاوی نانوذرات با استفاده از سرنگ و به‌صورت قطره‌ای اضافه شد و در نهایت پس از آماده شدن، محلول مجدداً به مدت ۴۵ min در حمام اولتراسونیک قرار داده شد.

### اندازه‌گیری پایداری و ارتفاع فوم با استفاده از آزمایش‌های استاتیک

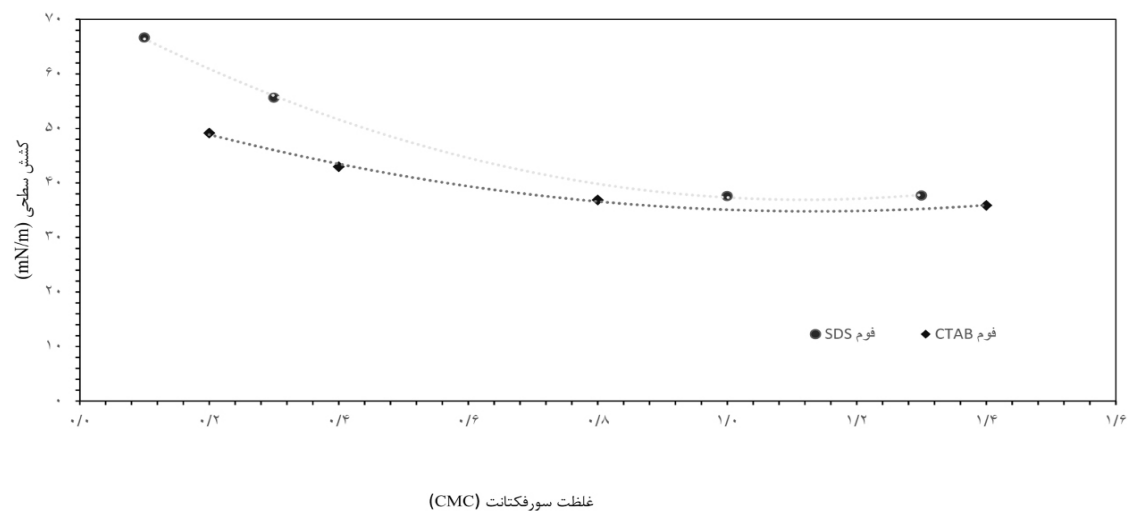
به‌منظور اندازه‌گیری قابلیت فوم‌زایی و پایداری فوم، آزمایش‌های استاتیک مطابق با استاندارد راس-میلز انجام شد [۱۹ و ۱۸]. مقدار cc ۲۰۰ از محلول آماده شده در بورت و cc ۵۰ در استوانه مدرج به آرامی ریخته شد. پس از ۲۰ min (جهت پایدار شدن محلول) شیر بورت باز شده و بلافاصله پس از ریختن آخرین قطره محلول، ارتفاع فوم توسط کولیس دیجیتال اندازه‌گیری شد. در نهایت، مدت زمانی که طول کشید ارتفاع فوم به نصف ارتفاع اولیه برسد، به‌عنوان نیمه عمر فوم ثبت شد. تمامی آزمایشات استاتیک سه مرتبه با دقت بالا تکرار شد، با این حال که خطای آزمایشات کمتر از ۵/۰٪ بود مقادیر متوسط گزارش شده‌اند. به‌منظور کاهش خطای آزمایش تمام آزمایش‌های مربوط به هر سورفکتانت و حتی در شرایطی که نانوذرات اضافه می‌شدند، در یک روز انجام شدند. با این روش، میزان خطا به‌علت تغییر دما، شرایط آزمایشگاه و حتی تحت تأثیر قرار گرفتن نتایج به‌علت بوی مواد شیمیایی مورد استفاده در آزمایشات دیگر به حداقل رسید.

### اندازه‌گیری کشش سطحی

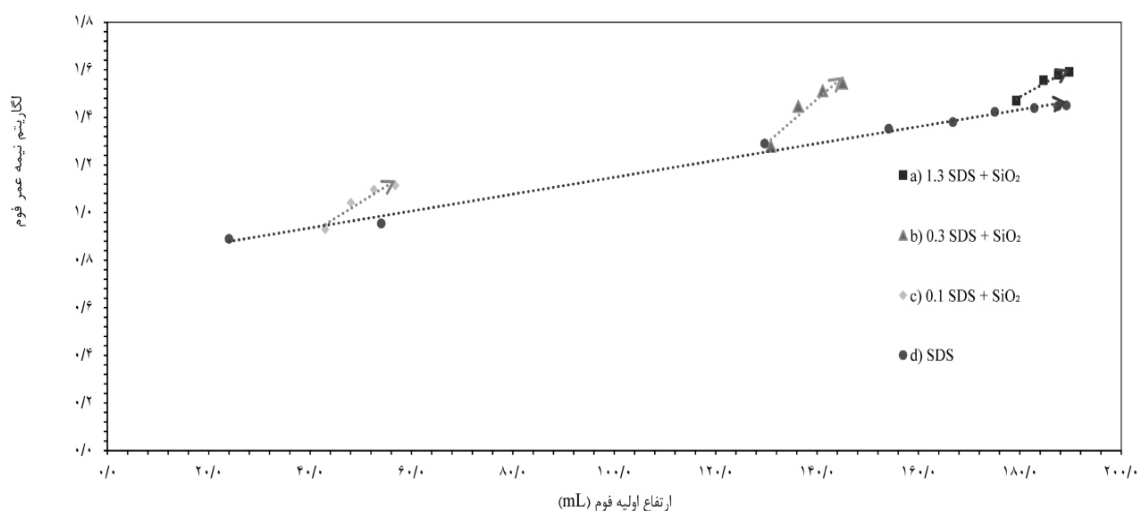
کشش سطحی محلول‌ها با استفاده از دستگاه ۷۰۰ Sigma (Biolin scientific, Sweden) اندازه‌گیری شد. تمام محلول‌ها ۴ h قبل از انجام آزمایش‌ها آماده و همه اندازه‌گیری‌ها در دما و فشار محیط انجام شده‌است. لازم به ذکر است که اندازه‌گیری کشش سطحی برای برخی از غلظت‌های انتخاب شده براساس نتایج آزمایشات استاتیک برای دست‌یابی



شکل ۱ مقایسه تغییرات نیمه عمر فوم براساس ارتفاع اولیه فوم در دو سورفکتانت SDS و CTAB



شکل ۲ تغییرات کشش سطحی براساس غلظت سورفکتانت برای فوم تشکیل شده از سورفکتانت های SDS و CTAB

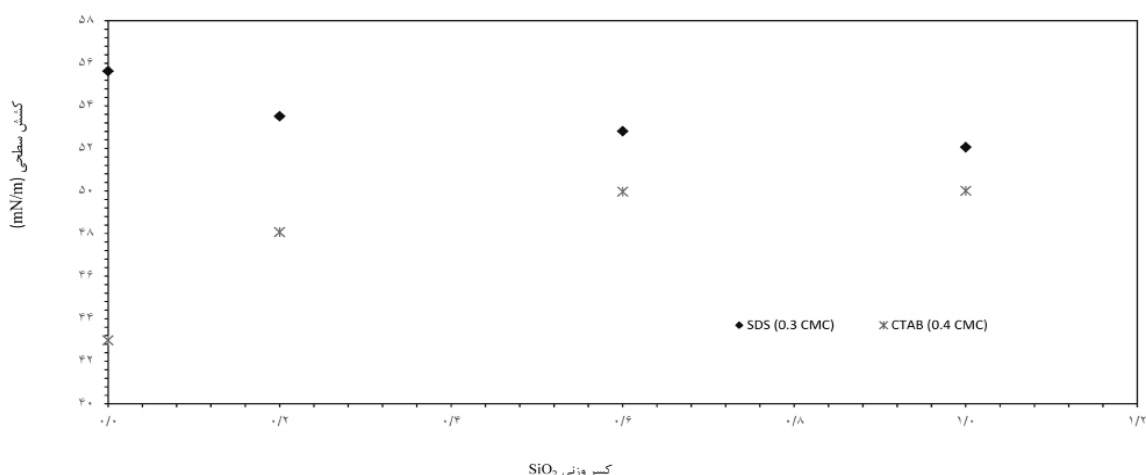


شکل ۳ مقایسه نیمه عمر فوم (پایداری) برحسب ارتفاع اولیه فوم (فوم زایی) برای سورفکتانت SDS بدون حضور نانوذرات و در حضور نانوذرات

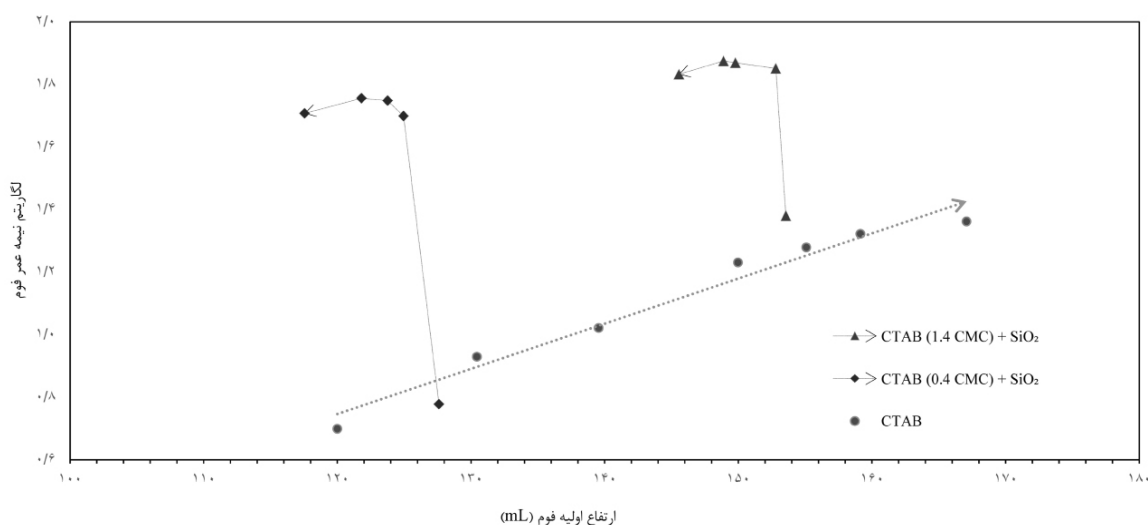


نیمه عمر فوم براساس ارتفاع فوم برای سری های دو و چهار رسم شده است و در این شکل هر نقطه بیانگر یک غلظت است و افزایش غلظت در جهت فلش است. همان طور که در **شکل ۵** نشان داده شده است، با افزایش غلظت  $\text{SiO}_2$  در یک غلظت ثابت CTAB، ارتفاع فوم کاهش می یابد اما پایداری فوم بیشتر می شود. تشکیل فوم کمتر به این معنی است که سورفکتانت کمتری به سطح تماس رسیده است که نتایج کشش سطحی طبق **شکل ۴** نیز این فرض را تأیید می کند. همان طور که در این شکل قابل مشاهده است، در غلظت های بالاتر نانوذرات، کشش سطحی بیشتر است و بیانگر این امر است که مولکول های سورفکتانت کمتری در سطح تماس وجود دارند. علی رغم کاهش قابلیت فومزایی و افزایش کشش سطحی، که به صورت طبیعی به علت کاهش حضور مولکول های سورفکتانت در سطح تماس باید پایداری فوم را کاهش دهد، پایداری افزایش می یابد. براساس این مشاهدات، می توان استنباط کرد که دلیل حضور کمتر مولکول های سورفکتانت در سطح تماس درگیر شدن با نانوذرات است و طبق مشاهدات این مطالعه و همچنین نتایج مطالعات پیشین می توان نتیجه گرفت افزایش پایداری به علت حضور نانوذرات در سطح تماس است [۱۲ و ۲۱، ۲۲].

و در این شکل هر نقطه بیانگر یک غلظت است و افزایش غلظت در جهت فلش است. همان طور که **شکل ۴** نشان می دهد، در حضور SDS با افزایش کسر وزنی  $\text{SiO}_2$  قابلیت فومزایی و پایداری فوم به صورت خطی افزایش می یابد و این روند را می توان در سه غلظت انتخابی مشاهده کرد. براساس **شکل ۳** زمانی که نانوذرات بیشتری به محلول اضافه می شود، ارتفاع فوم افزایش می یابد. بنابراین، می توان فرض کرد که مولکول های سورفکتانت بیشتری در حضور نانوذرات به سطح تماس می رسند. برای صحت سنجی این فرض، آزمایش های کشش سطحی مورد بررسی قرار گرفتند. **شکل ۴** نشان می دهد که افزایش غلظت نانوذرات در یک غلظت ثابت سورفکتانت، کشش سطحی را کاهش می دهد، لازم به ذکر است در این شکل غلظت در جهت فلش ها افزایش می یابد. کاهش کشش سطحی نشان دهنده وجود سورفکتانت بیشتری در سطح تماس است. در نتیجه می توان گفت که نیروهای دافعه بین مولکول های سورفکتانت و نانوذرات و همچنین اندازه بسیار کوچک تر مولکول های سورفکتانت در مقایسه با نانوذرات، باعث می شود مولکول های سورفکتانت بیشتری به سطح تماس برسند [۲۰]. هنگامی که از سورفکتانت CTAB استفاده شد، روند متفاوتی مشاهده شد. در **شکل ۵**



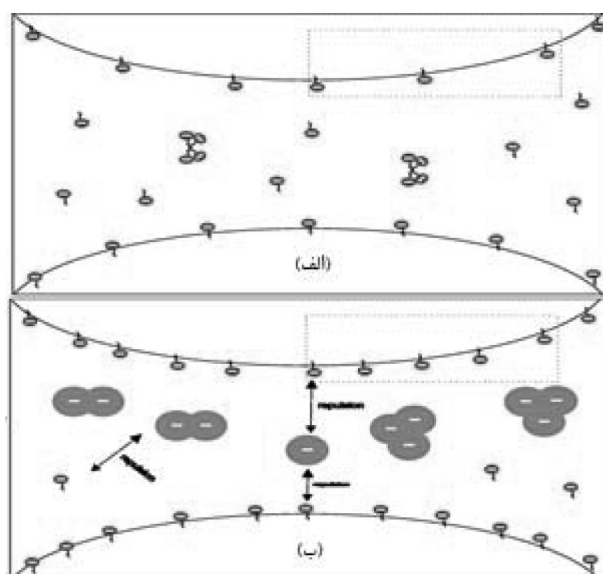
**شکل ۴** تغییرات کشش سطحی براساس غلظت  $\text{SiO}_2$  برای فوم تشکیل شده از ۰/۳ CMC SDS و ۰/۴ CMC سورفکتانت CTAB



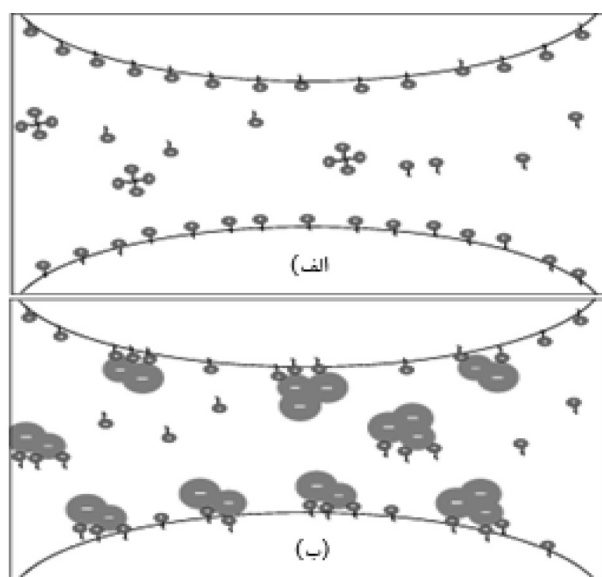
شکل ۵ مقایسه نیمه عمر فوم (پایداری) بر حسب ارتفاع اولیه فوم (فومزایی) برای سورفکتانت CTAB بدون حضور و در حضور نانوذرات

فومزایی کاهش می‌یابد. در این حالت، نانوذرات و مولکول‌های سورفکتانت به دلیل بارهای متفاوت یکدیگر را جذب می‌کنند. همان‌طور که در شکل ۷ نشان داده شده است، این جاذبه ترکیب جدیدی از نانوذرات و مولکول‌های CTAB را ایجاد می‌کند. در واقع سر مولکول‌های سورفکتانت به نانوذرات متصل شده و ترکیبی ایجاد می‌کند که دارای یک سر آب دوست و یک سر آب‌گریز است، بنابراین می‌تواند به عنوان یک مولکول سورفکتانت عمل کند. همانند مولکول‌های سورفکتانت، ترکیب تشکیل شده نیز تمایل دارد به سطح تماس برسد. افزایش انرژی جداسازی ذرات و کاهش نفوذ مولکولی به دلیل وجود نانوذرات در سطح تماس، پایداری را به میزان قابل توجهی افزایش می‌دهد. بدیهی است که به دلیل درگیر شدن مولکول‌های سورفکتانت با نانوذرات و تشکیل ترکیبات ذکر شده مولکول‌های سورفکتانت کمتری به سطح تماس می‌رسند، پس فومزایی کاهش و کشش سطحی افزایش می‌یابد. پس از بررسی آرایش ذرات می‌توان به بررسی اثر مارانگونی بر پایداری فوم در حضور نانوذرات پرداخت. جهت بررسی و مقایسه اثر مارانگونی از عدد مارانگونی که در رابطه ۱ تعریف شده است استفاده می‌شود.

اگرچه آرایش مولکول‌های سورفکتانت و نانوذرات به طور مختصر در پاراگراف‌های قبلی توضیح داده شد، این پاراگراف آن را با جزئیات بیشتری موشکافی می‌کند. همان‌طور که در شکل ۶ مشخص است، در حالتی که هم بار سورفکتانت و هم بار نانوذرات منفی هستند (سیستم فوم هم بار)، دافعه الکترواستاتیک از نزدیک شدن مولکول‌های سورفکتانت و نانوذرات جلوگیری می‌کند. بدیهی است که مولکول‌های سورفکتانت بسیار سبک‌تر از نانوذرات هستند. مولکول‌های سورفکتانت به دلیل وزن کمتر، یک سر آب دوست و یک سر آب‌گریز، تمایل بیشتری برای رفتن به سطح تماس دارند. در نتیجه، وجود نانوذرات در فیلم مایع به عنوان یک محرک برای مولکول‌های سورفکتانت عمل می‌کند و نیروی دافعه باعث می‌شود مولکول‌های سورفکتانت موجود در فیلم مایع به سطح تماس برسند. با توجه به دلایل ذکر شده، استفاده از نانوذرات به همراه سورفکتانت معادل است با استفاده از غلظت‌های بیشتر سورفکتانت و در نتیجه قابلیت فومزایی را افزایش می‌دهد. همان‌طور که در پاراگراف‌های بالا اشاره شد، در حالت دوم (سورفکتانت کاتیونی و نانوذرات آنیونی)، با افزایش غلظت  $\text{SiO}_2$ ، برخلاف پایداری فوم و کشش سطحی،



شکل ۶ الف) چیدمان مولکول‌های SDS در لاملا و سطح تماس در غیاب نانوذرات و ب) آرایش مولکول‌های SDS و نانوذرات در لاملا و سطح تماس



شکل ۷ الف) چیدمان مولکول‌های CTAB در لاملا و سطح تماس در غیاب نانوذرات و ب) آرایش مولکول‌های CTAB و نانوذرات در لاملا و سطح تماس.

کاهش سطحی با افزایش غلظت نانوذرات در یک سیستم همبار افزایش می‌یابد. این افزایش شیب کششی سطحی نشان‌دهنده افزایش عدد مارانگونی و در نتیجه تأثیر مثبت اثر مارانگونی است که ثبات کف را افزایش می‌دهد. برخلاف سیستم فوم همبار، در سیستم فوم ناهمبار، گرادیان کاهش سطحی با افزایش غلظت نانوذرات کاهش می‌یابد. همان‌طور که ذکر شد در سیستم ناهمبار، نانوذرات به سطح

عدد مارانگونی (Ma) عدد بی‌بعدی است که از نسبت نیروی کشش سطحی به نیروی ویسکوزیته حاصل می‌شود. افزایش این عدد به منزله افزایش گرادیان کشش سطحی است که عامل رخداد اثر مارانگونی است. در این مطالعه، اثر مارانگونی طبق رابطه ۱ با استفاده از گرادیان کشش سطحی بر غلظت نانوذرات مورد بررسی قرار گرفته است [۲۳] و [۱۱]. نتایج جدول ۲ نشان می‌دهد که گرادیان

جدول ۲ نتایج مربوط به تغییرات کشش سطحی براساس غلظت نانوذرات برای بررسی اثر مارانگونی

سديم دودسيل سولفات (CMC)	هگزا دسیل تری متیل آمونیم برمید (CMC)	نانوذرات کسر وزنی	$ d\sigma/dc $
۰/۳	-	۰/۲	۱/۶۹
۰/۳	-	۰/۶	۱/۸۱
۰/۳	-	۱	۱/۹۳
-	۰/۴	۰/۲	۶/۰۸
-	۰/۴	۰/۶	۳/۴۳
-	۰/۴	۱	۰/۷۷

همبار) و ۴) سورفکتانت CTAB و نانوذرات  $SiO_2$  (سیستم ناهمبار) انجام شدند. نتایج حاصل از این مطالعه در ادامه ذکر شده‌اند.

• حضور نانوذرات باعث افزایش پایداری فوم در هر دو سیستم مورد مطالعه می‌شود درحالی‌که فوم‌زایی برخلاف سیستم همبار در سیستم ناهمبار کاهش می‌یابد.

• در سیستم فوم نانوذرات آنیونی-سورفکتانت آنیونی (همبار)، نیروهای دافعه بین نانوذرات و مولکول‌های سورفکتانت باعث می‌شود مولکول‌های سورفکتانت بیشتری به‌سطح تماس برسند و در نتیجه پایداری فوم افزایش می‌یابد. علاوه‌براین، جریان مارانگونی با جریان تخلیه فیلم مایع مقابله می‌کند و عامل دیگر پایداری فوم است.

• در سیستم فوم سورفکتانت کاتیونی-نانوذرات آنیونی (ناهمبار)، عامل اصلی که پایداری فوم را بهبود می‌بخشد، وجود ترکیب‌های تشکیل شده از مولکول‌های سورفکتانت و نانوذرات در سطح تماس است. حضور این ترکیب‌ها در سطح تماس، انرژی جداسازی ذرات را افزایش می‌دهد و پایداری فوم را افزایش می‌دهد. برخلاف سیستم همبار در این سیستم، الاستیسیته بالای سطح مانع جریان مارانگونی می‌شود.

تماس می‌رسند. بنابراین، وجود ذرات جامد در سطح تماس باعث می‌شوند سطح تماس جامد شود [۱۲] و جامد مانند شدن سطح مانع جریان یافتن سورفکتانت در سطح تماس می‌شود. لذا در این سیستم جریان مارانگونی اتفاق نمی‌افتد.

$$M \propto \frac{1}{\mu D} \cdot \frac{d\sigma}{dC} \quad (۱)$$

$\mu$  ویسکوزیته،  $D$  ضریب نفوذمولکولی،  $\sigma$  کشش سطحی،  $C$  غلظت و  $M$  عدد مارانگونی است.

### نتیجه‌گیری

در این مطالعه به‌منظور بررسی تأثیر جریان مارانگونی در حضور نانوذرات و آرایش نانوذرات و مولکول‌های سورفکتانت در لاملا بر پایداری فوم دو سیستم همبار و ناهمبار فوم به‌صورت هم‌زمان و در شرایط یکسان مورد مطالعه قرار گرفتند. برای هر دو سیستم آزمایشات مشابه در شرایط یکسان انجام شدند تا رفتار دو سیستم مقایسه شود و عوامل مؤثر در پایداری آن‌ها مشخص شود. بدین منظور، آزمایش‌های استاتیک جهت اندازه‌گیری پایداری فوم‌زایی و اندازه‌گیری کشش سطحی انجام شدند. همه آزمایشات ذکر شده برای چهار سری فوم تشکیل شده از: ۱) سورفکتانت SDS، ۲) سورفکتانت CTAB سورفکتانت SDS و نانوذرات  $SiO_2$  (سیستم

## مراجع

- [1]. Green D W, Willhite G P (1998) Enhanced oil recovery, Henry L. Doherty Memorial Fund of AIME, Society of Petroleum Engineers.
- [2]. Singh R, Mohanty K K (2016) Foams stabilized by in-situ surface-activated nanoparticles in bulk and porous media, SPE Journal, 21: 121-130.
- [3]. Maini B Ma V (1984) Relationship between foam stability measured in static tests and flow behavior of foams in porous media, SPE Annual Technical Conference and Exhibition, OnePetro.
- [4]. Sohrabi M, Danesh A, Tehrani D H, Jamiolahmady M (2008) Microscopic mechanisms of oil recovery by near-miscible gas injection, Transport in Porous Media, 72: 351-367.
- [5]. Madadzadeh A, Sadeghein A, Riahi S (2020) The use of nanotechnology to prevent and mitigate fine migration: a comprehensive review, Reviews in Chemical Engineering.
- [6]. Khoshnevis N, Mahani H, Rehling J (2017) Investigation of pressure transient behavior during Injection Fall-off (IFO) test in foam flooding, Journal of Petroleum Science and Engineering, 149: 860-872.
- [7]. Shojaiepour M, Rashidi F, Dabir B, Amirsardari M (2021) Investigation of foam injection scenarios to control the gas oil ratio in carbonate reservoirs with permeability heterogeneity: simulation of the process in an oil reservoir sector, Journal of Petroleum Research, 31, 119: 3-14.
- [8]. Khoshkalam Y, Khosravi M, Roostami B (2019) An experimental investigation on foam injection in a fractured matrix: effect of viscous cross flow, Journal of Petroleum Research, 29, 98-2: 61-71.
- [9]. Weber E H (1854) Mikroskopische beobachtungen sehr gesetzmäßiger bewegungen, welche die bildung von niederschlagen harziger körper aus weingeist begleiten berichte über die verhandlungender königlich schsischen gesellschaft der wissenschaften, Mathematisch-Physische Classe, 57.
- [10]. Thiele R, Brettschneider O, Repke J U, Thielert H, Wozny G (2003) Experimental investigations of foaming in a packed tower for sour water stripping, Industrial and Engineering Chemistry Research, 42: 1426-1432.
- [11]. Khosravi M, Bahramian A, Emadi M, Roostami B, Roayaie E (2014) Effect of Marangoni flow on recovery of bypassed oil during CO<sub>2</sub> injection, Journal of Petroleum Science and Engineering, 114: 91-98.
- [12]. Singh R, Mohanty K K (2014) Synergistic stabilization of foams by a mixture of nanoparticles and surfactants, SPE Improved Oil Recovery Symposium, OnePetro.
- [13]. Nguyen P, Fadaei H, Sinton D (2014) Nanoparticle stabilized CO<sub>2</sub> in water foam for mobility control in enhanced oil recovery via microfluidic method, SPE Heavy Oil Conference-Canada, OnePetro.
- [14]. Ma H, Luo M, Dai L L (2008) Influences of surfactant and nanoparticle assembly on effective interfacial tensions, Physical Chemistry Chemical Physics, 10: 2207-2213.
- [15]. Maestro A, Rio E, Drenckhan W, Langevin D, Salonen A (2014) Foams stabilised by mixtures of nanoparticles and oppositely charged surfactants: relationship between bubble shrinkage and foam coarsening, Soft Matter, 10: 6975-6983.
- [16]. Yang W, Wang T, Fan Z, Miao Q, Deng Z, Zhu Y (2017) Foams stabilized by in situ-modified nanoparticles and anionic surfactants for enhanced oil recovery, Energy and Fuels, 31: 4721-4730.
- [17]. Zhao J, Torabi F, Yang J (2021) The synergistic role of silica nanoparticle and anionic surfactant on the static and dynamic CO<sub>2</sub> foam stability for enhanced heavy oil recovery: An experimental study, Fuel, 287: 119443.
- [18]. Rosen M, Solash J (1969) Factors affecting initial foam height in the Ross-Miles foam test, Journal of the American Oil Chemists' Society, 46: 399-402.
- [19]. John R, Miles, G. D (1941) An apparatus for comparison of foaming properties of soaps and detergents, Oil and Soap, 18, 5: 99-102.
- [20]. Vatanparast H, Samiee A, Bahramian A, Javadi A (2017b) Surface behavior of hydrophilic silica nanoparticle-SDS surfactant solutions: I. Effect of nanoparticle concentration on foamability and foam stability, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 513: 430-441.
- [21]. Binks B P, Lumsdon S (2000) Influence of particle wettability on the type and stability of surfactant-free emulsions, Langmuir, 16: 8622-8631.
- [22]. Vatanparast H, Javadi A, Bahramian A (2017a) Silica nanoparticles cationic surfactants interaction in water-oil system, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 521: 221-230.
- [23]. Saranjam N, Chandra S, Mostaghimi J, Fan H, immer J (2016) Orange peel formation due to surface tension-driven flows within drying paint films, Journal of Coatings Technology and Research, 13, 3: 413-426.

# بهینه‌سازی کاتالیست $\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$ برای فرآیند ریفرمینگ خشک متان در راکتور میکروکانالی

سید رضا یحیوی و غلامرضا مرادی\*

آزمایشگاه کاتالیست، دانشکده نفت و پتروشیمی، دانشگاه رازی کرمانشاه، ایران

تاریخ دریافت: ۱۴۰۱/۰۲/۲۶ تاریخ پذیرش: ۱۴۰۱/۰۴/۲۲

## چکیده

غیرفعال شدن کاتالیست‌های  $\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  در فرآیند ریفرمینگ خشک متان همواره یکی از مشکلات این فرآیند می‌باشد که بسیار مورد توجه محققان بوده است. استفاده از کبالت به عنوان تقویت کننده‌های فاز فعال و اکسید منیزیم جهت بهبود پایداری کاتالیست در این تحقیق مورد بررسی قرار گرفته است. همچنین برای توزیع بهتر کاتالیست و انتقال حرارت بهتر از راکتور میکروکانالی استفاده شد. بنابراین کاتالیست‌های  $\text{Ni-Co}/\text{Al}_2\text{O}_3\text{-MgO}$  تهیه و عملکرد آنها در راکتور میکروکانالی در دمای ۵۰۰ تا ۸۰۰ °C و فشار ۱ atm با نسبت مولی خوراک  $\text{CH}_4/\text{CO}_2=1$  و سرعت فضایی ۲۴ L/g.h بررسی گردید. در این پژوهش، تأثیر افزودن بهبود دهنده‌ها بر کارایی کاتالیست‌های سنتز شده بررسی گردید و نسبت بهینه  $\text{Ni}/\text{Co}$  برابر ۵ در ساختار کاتالیست استفاده شده در میکروراکتور بدست آمد. مشخصات نمونه‌های سنتز شده توسط آنالیزهای XRD، BET و FESEM بررسی گردید. استفاده همزمان از کبالت و اکسید منیزیم باعث بیشتر شدن فعالیت کاتالیست و پایداری شدن آن در طی ۱۸ h آزمایش می‌گردد.

**کلمات کلیدی:** کاتالیست، ریفرمینگ، متان، هیدروژن، راکتور میکروکانالی.

## مقدمه

بازارهای مصرف، تبدیل گاز طبیعی به یک سوخت مایع در سال‌های اخیر مورد توجه دانشمندان قرار گرفته است. تبدیل مستقیم گاز طبیعی به سوخت مایع یکی از فرآیندهایی است که به دلیل پیچیده بودن صنعتی نشده است. در کنار تبدیل مستقیم، روش تبدیل غیرمستقیم وجود دارد که در طی آن ابتدا گاز طبیعی به گاز سنتز (مخلوط هیدروژن و کربن مونوکسید) تبدیل می‌شود و در ادامه طی واکنش‌هایی نظیر فیشر تراپش، هیدروکربن‌های مایع تولید می‌شود [۲].

یافتن جایگزین یک منبع انرژی جدید به جای منابع سوخت‌های فسیلی با توجه به تجدید ناپذیر بودن این منابع انرژی، همواره یک چالش اساسی برای دانشمندان می‌باشد. از طرفی، رفع مشکلات زیست محیطی ناشی از فعالیت بشری از جمله حذف گازهای گلخانه‌ای همواره یک چالش بزرگ بوده است [۱]. به علاوه با توجه به نیاز

\*مسئول مکاتبات

آدرس الکترونیکی gmoradi@razi.ac.ir

شناسه دیجیتال: (DOI:10.22078/PR.2022.4782.3155)



[۷]. اما از آن جایی که فرآیند ریفرمینگ خشک متان گرماگیر است، انجام فرآیند در دمای بالا باعث رسوب کربن روی کاتالیست [۷، ۸] و کلوخه شدن [۹] و نهایتاً غیرفعال شدن کاتالیست و کاهش انتخاب پذیری می شود. از این رو، ساخت کاتالیست های دوفلزی به دلیل خواص مختلف شیمیایی تحت تأثیر اثر متقابل دو فلز می تواند امکان ساخت یک کاتالیست خوب را فراهم سازد [۱۰، ۱۱].

کبالت، پلاتین، مس، روتنیوم و رودیوم فلزاتی هستند که استفاده از آن ها به عنوان تقویت کننده فاز فعال، نتایج خوبی در کارایی کاتالیست از خود نشان داده اند [۱۲-۱۷].

افزودن تقویت کننده به پایه نیز با توجه به تغییر خواص فیزیکی و شیمیایی پایه، بسیار گزارش شده است. افزودن MgO به دلیل مقاومت حرارتی بالا [۱۸]، CeO<sub>2</sub> به دلیل خاصیت اکسیژن رسانی به کاتالیست در طول فرآیند [۱۹] و ZrO<sub>2</sub> به دلیل مقاومت در برابر رسوب کربن [۲۰] به پایه باعث فعالیت پایدار کاتالیست در طول فرآیند می شوند. سنتز کاتالیست های نیکل، با روش هایی چون تلقیح، هم رسوبی و سل ژل گزارش شده است. در این مقاله سنتز کاتالیست های تقویت شده نیکل و استفاده از بهبود دهنده در پایه و فاز فعال را بررسی خواهیم کرد و پس از تعیین خصوصیات فیزیکی نمونه های سنتز شده، ارزیابی عملکرد این کاتالیست ها در میکروآکتور را گزارش خواهیم کرد.

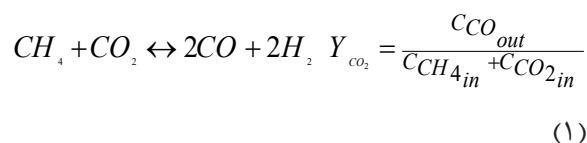
## مواد، تجهیزات و روش ها

### مواد مورد استفاده برای سنتز کاتالیست ها

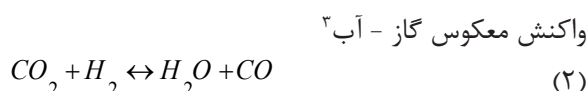
به منظور سنتز کاتالیست Ni-Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-MgO از مواد زیر استفاده شده است:

نیتрат منیزیم (Ni(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>·6H<sub>2</sub>O) به عنوان پیش ماده فاز فعال.

روش های گوناگونی برای تبدیل گاز طبیعی به گاز سنتز وجود دارد که می توان به ریفرمینگ متان با بخار آب [۳]، ریفرمینگ خود گرمایی<sup>۱</sup> [۴]، اکسیداسیدن جزئی [۵] و ریفرمینگ متان با کربن دی اکسید (ریفرمینگ خشک) اشاره کرد. باید در نظر داشت که هر چه نسبت H<sub>2</sub>/CO در مخلوط گاز سنتز مورد استفاده به ۱ نزدیک تر باشد، امکان تولید هیدروکربن مایع به طول زنجیر کربن بیشتر، بالاتر می رود. از این رو فرآیند ریفرمینگ خشک متان به دلیل تولید گاز سنتز با نسبت H<sub>2</sub>/CO برابر با ۱، برای تولید گاز سنتز مورد نیاز برای فرآیندهای مایع سازی مورد توجه قرار گرفته است. همچنین با توجه به حذف دو گاز گلخانه ای متان و کربن دی اکسید طی فرآیند و تبدیل آنها به مواد با ارزش و نیز، عدم نیاز به فرآیندهای خالص سازی، ریفرمینگ خشک متان<sup>۲</sup> جایگاه ویژه ای دارد. واکنش ریفرمینگ خشک به صورت زیر است:



در کنار واکنش ریفرمینگ، واکنش های جانبی نیز انجام می شود که مهم ترین آنها عبارتند از:



فلزات نجیب پلاتین (Pt)، روتنیوم (Rh) و رودیوم (Ru) فعالیت بالایی در فرآیند ریفرمینگ خشک متان از خود در این نشان می دهند [۶]. اما به دلیل قیمت بالا و در دسترس نبودن از مرحله صنعتی استفاده چشمگیری ندارند. در مقابل، فلزات واسطه نظیر نیکل (Ni) و کبالت (Co) نیز فعالیت قابل قبولی در فرآیند ریفرمینگ متان با کربن دی اکسید از خود نشان می دهند و به دلیل دسترسی آسان تر و هزینه پایین تر برای این فرآیند مد نظر هستند

1. Auto thermal

2. Dry Reforming of Methane (DRM)

3. Reverse Water – Gas Shift Reaction (RWGSR)

4. Methane Decomposition Reaction

5. Boudouard Reaction

تهیه محلول آبی نیترات منیزیم و افزودن گاما آلومینا به آن که برای پخش کردن ذرات منیزیم روی پایه آلومینیوم و انجام فرآیند تلقیح، از روش هم‌زدن مکانیکی استفاده شده است. پس از تهیه محلول پیش ماده پایه، خشک کردن در معرض جریان هوا و در دمای  $110^{\circ}\text{C}$  و سپس کلسیناسیون در دمای  $800^{\circ}\text{C}$  انجام گرفته است.

پس از تهیه پایه کاتالیست، پیش ماده‌های نیکل و کبالت به صورت محلول آبی به محلول آبی پایه افزوده شده و مجدداً عمل تلقیح انجام می‌شود. سپس فرآیند خشک کردن نمونه‌ها در معرض جریان هوا و در دمای  $110^{\circ}\text{C}$  انجام می‌گیرد. کلسیناسیون نهایی نمونه‌ها نیز در دمای  $500^{\circ}\text{C}$  تکمیل شده و نهایتاً نمونه‌ها به صورت پودری شکل تهیه شدند.

نیترات کبالت ( $\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ) به عنوان پیش ماده تقویت کننده فاز فعال.

گاما آلومینا ( $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ ) به عنوان پایه کاتالیست.

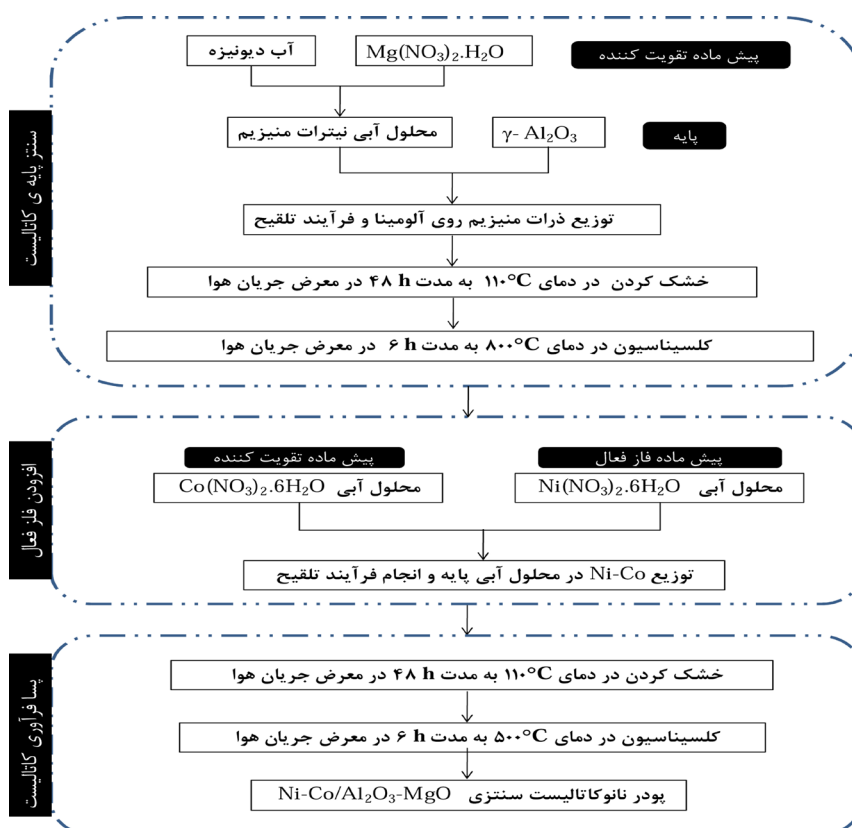
نیترات منیزیم ( $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ ) به عنوان پیش ماده تقویت کننده پایه.

آب دیونیزه، متانول و استون به عنوان حلال.

تمامی مواد شیمیایی مورد استفاده، از محصولات شرکت "مرک" می‌باشند. آب دیونیزه مورد استفاده، از مرکز آزمایشگاهی دانشگاه رازی کرمانشاه تهیه شده است.

### روش سنتز کاتالیست

سنتز نمونه‌ها همان طور که در شکل ۱ نشان داده شده است در سه مرحله آماده‌سازی پایه و افزودن فاز فعال و پس‌افزآوری کاتالیست دنبال می‌شود که به طور کامل به شرح زیر است:



شکل ۱ نمودار جریانی سنتز کاتالیست  $\text{Ni-Co/Al}_2\text{O}_3\text{-MgO}$  به روش تلقیح.

متانول به حالت یک دوغاب در آمده و روی صفحه فولادی پوشش داده شده است. صفحه پوشش داده شده به مدت ۸ h در یک آون با دمای  $100^{\circ}\text{C}$  در معرض جریان هوا خشک شده است و برای اطمینان از چسبیدن پودر کاتالیست به صفحه به مدت ۳ h در یک کوره با دمای  $500^{\circ}\text{C}$  قرار گرفته است.

سیستم ارزیابی عملکرد کاتالیست‌های سنتزی از سه بخش ورود خوراک، واکنش و قسمت آنالیز گازهای خروجی تشکیل شده است. خوراک با نسبت ۱  $\text{CH}_4/\text{CO}_2$  وارد راکتور می‌شود. محدوده دمای واکنش  $500-800^{\circ}\text{C}$  می‌باشد. برای فعال کردن کاتالیست‌های سنتزی، عملیات احیا نمونه‌های سنتزی با هیدروژن به مدت ۱ h در دمای  $700^{\circ}\text{C}$  انجام شده است. فشار واکنش ۱ bar و سرعت فضایی گاز<sup>۴</sup> برابر با ۲۴ L/g.h در نظر گرفته شده است. برای محاسبات میزان تبدیل و همچنین بازدهی فرآیند از روابط زیر استفاده شده است:

$$X_i = \frac{C_{i\text{in}} - C_{i\text{out}}}{C_{i\text{in}}}, i: \text{CH}_4 \text{ \& } \text{CO}_2 \quad (5)$$

$$Y_{\text{H}_2} = \frac{C_{\text{H}_2\text{out}}}{2C_{\text{CH}_4\text{in}}} \quad (6)$$

$$Y_{\text{CO}_2} = \frac{C_{\text{CO}_2\text{out}}}{C_{\text{CH}_4\text{in}} + C_{\text{CO}_2\text{in}}} \quad (7)$$

برای تنظیم دبی گاز ورودی به راکتور (خوراک) از کنترل کننده‌های جرمی جریان استفاده شده است که قبل از اندازه‌گیری دبی، بر اساس گازهای تزریقی، کالیبره شده‌اند. برای آنالیز خوراک و محصولات واکنش نیز از دستگاه کروماتوگرافی گازی با شناساگرهای FID و TCD استفاده شده است که بر اساس گازهای متان، هیدروژن، کربن دی اکسید و کربن مونو اکسید کالیبره می‌باشد.

همچنین مقادیر نسبی فاز فعال و پایه در جدول ۱ نشان داده شده است.

جدول ۱ مقادیر نسبی فاز فعال و پایه در نمونه‌های سنتزی.

نسبت Ni/Co	نسبت Al/Mg	نام کاتالیست
---	---	Ni/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
۵	---	Ni-Co/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
---	۵	Ni/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -MgO
۵	۵	Ni-Co/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -MgO
۳	۵	Ni-Co/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -MgO

### تعیین خصوصیات نمونه‌های سنتزی

برای مطالعه ساختار کریستالی نمونه‌های سنتز شده از آنالیز پراش اشعه ایکس<sup>۱</sup> انجام شده است. اندازه‌گیری سطح مخصوص و حجم کلی حفره‌های نمونه‌ها از طریق آنالیز جذب و دفع نیتروژن<sup>۲</sup> صورت گرفت و برای بررسی مورفولوژی سطح نمونه‌ها نیز آنالیز تصویربرداری با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی<sup>۳</sup> به خدمت گرفته شده است.

### سیستم ارزیابی کاتالیست‌ها

در این تحقیق از راکتور میکرو کانالی طراحی و ساخته شده در آزمایشگاه کاتالیست دانشگاه رازی استفاده شده است [۲۱]. بدین ترتیب که روی دو صفحه از جنس فولاد ضد زنگ، میکرو کانال‌ها ایجاد شده اند و یک صفحه از جنس فولاد ضد زنگ که در هر دو سمت آن پوشش کاتالیستی ایجاد شده است بین دو صفحه کانالیزه شده، به صورت ساندویچی قرار می‌گیرد. شکل کلی راکتور میکرو کانالی در پیوست الف نشان داده شده است.

هر صفحه کانالیزه شده دارای ۲۶ میکروکانال به عرض و عمق ۱ mm و ۰/۵ mm به ترتیب است. قبل از پوشش‌دهی کاتالیست روی صفحه استیل، سطح آن کاملاً سمباده زنی شده و درون محلول استون قرار گرفته است. سپس تحت امواج اولتراسوند، به مدت ۱۰ min قرار داده شده است تا هیچ گونه آلودگی روی آن نباشد. پودر کاتالیست سنتز شده، توسط

1. X-ray Diffraction (XRD)

2. BET analysis

3. FESEM

4. Gas Hourly Space Velocity (GHSV)

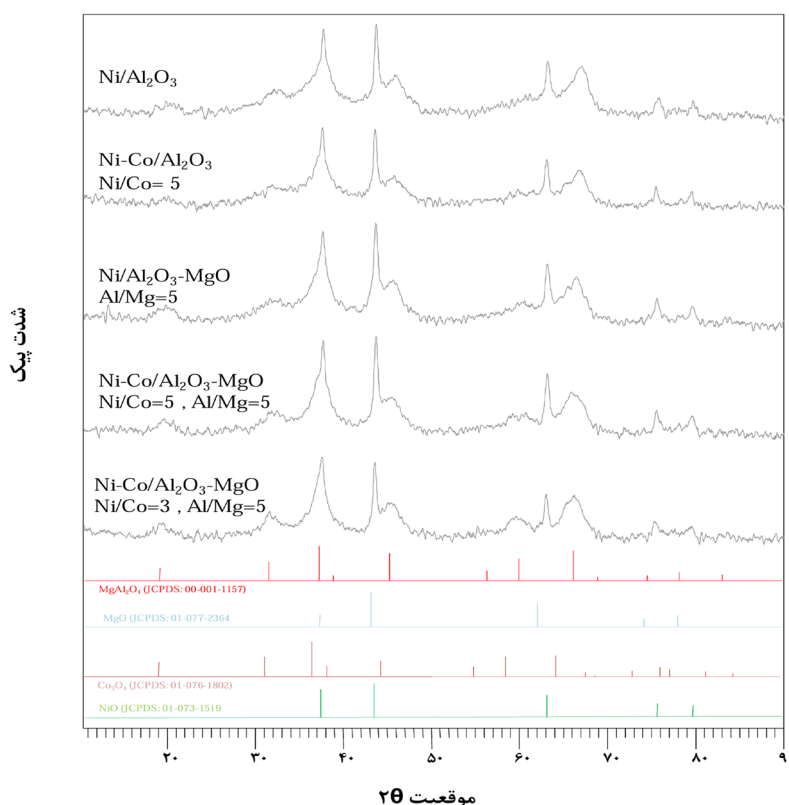
## نتایج و بحث‌ها

## تعیین مشخصات فیزیکی کاتالیست‌های سنتزی

نتایج آنالیز پراش اشعه ایکس، برای نمونه‌های سنتز شده در شکل ۲ نشان داده شده است. پیک‌های شاخص طبق استاندارد JCPDS 01-073-1519، در زاویه‌های متناظر  $37/3^\circ$ ،  $43/4^\circ$ ،  $63/0^\circ$ ،  $75/6^\circ$  و  $79/6^\circ$  تشکیل ساختار کریستالی اکسید نیکل را نشان می‌دهند. ساختار کریستالی اکسید کبالت نیز با پیک‌های مشخص شده در زوایای  $9/0^\circ$ ،  $31/3^\circ$ ،  $36/9^\circ$ ،  $44/9^\circ$ ،  $59/5^\circ$  و  $65/3^\circ$  طبق استاندارد JCPDS 01-076-1802 مطابقت دارد. ساختار کریستالی اسپینل  $MgAl_2O_4$  طبق استاندارد JCPD 00-001-1157 در زوایای  $19/2^\circ$ ،  $31/6^\circ$ ،  $37/3^\circ$ ،  $45/3^\circ$ ،  $60/0^\circ$  و  $66/2^\circ$  مشاهده شده است. پیک‌های مشخص شده در زاویه‌های  $37/0^\circ$ ،  $43/0^\circ$ ،  $62/4^\circ$ ،  $74/8^\circ$  و  $78/7^\circ$  نیز تشکیل ساختار کریستالی اکسید منیزیم را طبق استاندارد JCPDS 01-077-2364 اثبات می‌کنند.

از مقایسه نمودارها مشخص است که با افزودن منیزیم اکسید و کبالت یه عنوان تقویت کننده به ساختار کاتالیست، بلورینگی ساختار کاتالیست بهبود پیدا می‌کند که این امر با افزایش ارتفاع پیک‌های متناظر مشخص است. تغییر ساختار فاز فعال با تغییر نسبت Ni/Co از ۳ به ۵ نشان می‌دهد که با کاهش کبالت در ساختار فاز فعال، میزان بلورینگی کاهش یافته و کاتالیست به سمت آمورف شدن بیشتر می‌رود که این امر می‌تواند موجب بالارفتن میزان پخش شونده‌گی فاز فعال گردد که انتظار می‌رود این امر باعث دسترسی بهتر واکنش دهنده‌ها به فاز فعال شود.

تشکیل فاز اسپینل  $MgAl_2O_4$  در طی فرآیند کلسیناسیون نیز می‌تواند با تغییر در ماهیت اسیدیته کاتالیست، کارایی آن را در طول فرآیند بهبود بخشد زیرا کربن دی اکسید یک گاز اسیدی است و جذب و تبدیل آن روی کاتالیستی با خاصیت قلیایی تر، بهتر صورت می‌گیرد.



شکل ۲ آنالیز پراش اشعه ایکس برای کاتالیست‌های سنتزی  $Ni/Al_2O_3$  بنیان.

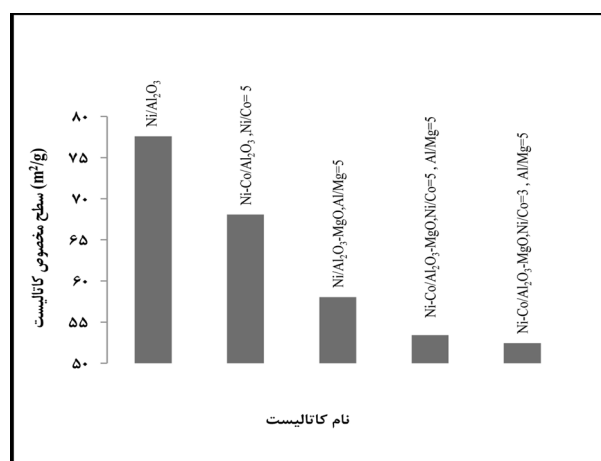
است. واضح است که افزودن کبالت، باعث شده تا یک بی‌نظمی در نوع چینش ذرات سطح بوجود آید و ساختار سطح کاتالیست تحت تأثیر قرار گیرد.

با مقایسه تصاویر مربوط به کاتالیست  $\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  و کاتالیست  $\text{Ni-Co}/\text{Al}_2\text{O}_3$  با نسبت  $\text{Al}/\text{Mg}$  برابر با ۵ مشاهده می‌شود که افزودن منیزیم اکسید به ساختار پایه، باعث شده است که از حجم خلل و فرج سطح کاسته شود که این امر به دلیل اشغال قسمتی از سطح آلومینا توسط منیزیم اکسید می‌باشد.

اثر استفاده از تقویت‌کننده فاز فعال و پایه به صورت همزمان در ساختار کاتالیست‌ها، در تصاویر مربوط به کاتالیست  $\text{Ni-Co}/\text{Al}_2\text{O}_3\text{-MgO}$  با نسبت  $\text{Ni}/\text{Co}$  و  $\text{Al}/\text{Mg}$  برابر با ۵ و کاتالیست  $\text{Ni-Co}/\text{Al}_2\text{O}_3\text{-MgO}$  با نسبت  $\text{Ni}/\text{Co}$  برابر با ۳ و  $\text{Al}/\text{Mg}$  برابر با ۵ قابل مشاهده است. همان‌گونه که قبلاً نیز اشاره شد افزودن منیزیم اکسید به پایه کاتالیست باعث کم شدن سطح حفره‌ها به دلیل اشغال آنها توسط ذرات منیزیم می‌گردد. از طرفی مشاهده می‌شود که با افزودن کبالت اکسید به ساختار کاتالیست، ساختار سطح تغییر کرده و نوع چینش فلز در سطح متفاوت می‌باشد. افزایش نسبت کبالت به نیکل در ساختار کاتالیست موجب می‌شود که اندازه ی ذرات در سطح کاتالیست درشت‌تر گردد و یکنواختی توزیع اندازه ذرات، به هم بخورد.

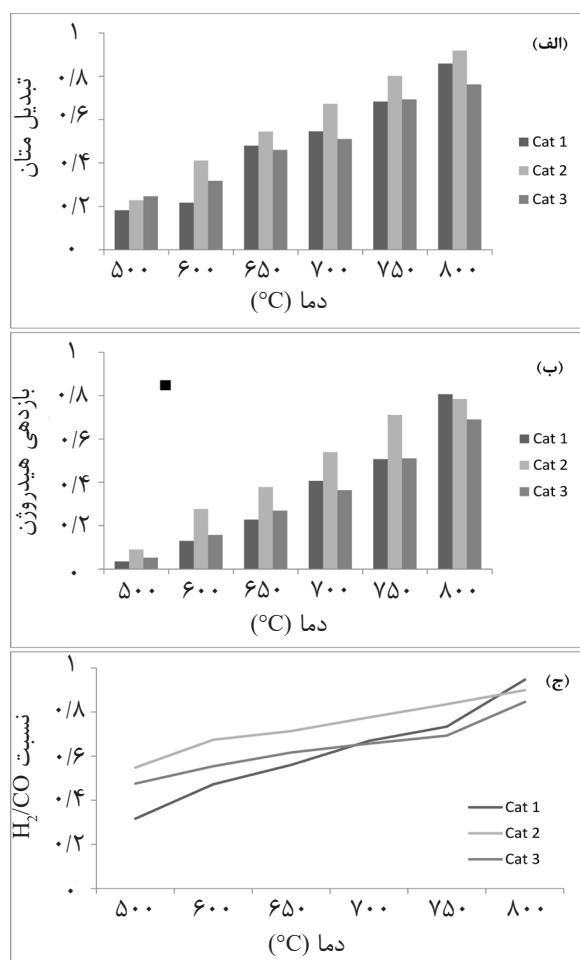
برای تعیین سطح ویژه نمونه‌های سنتزی، آنالیز جذب و دفع نیتروژن مورد استفاده قرار گرفته است. گاما آلومینای مورد استفاده به عنوان پایه، سطح مخصوصی برابر با  $116 \text{ m}^2/\text{g}$  دارد. با افزودن منیزیم اکسید به عنوان تقویت‌کننده به پایه، سطح مخصوص پایه به  $72/6 \text{ m}^2/\text{g}$  می‌رسد. این کاهش سطح مخصوص به علت این است که ذرات منیزیم اکسید سطح آلومینا را پوشش داده و قسمتی از خلل و فرج سطحی را اشغال می‌کنند. نتیجه آنالیز تعیین سطح مخصوص برای کاتالیست‌های سنتز شده در شکل ۳ نشان داده شده است. کاتالیست  $\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  سطح مخصوصی برابر با  $77/58 \text{ m}^2/\text{g}$  دارد. افزودن کبالت و منیزیم اکسید به عنوان تقویت‌کننده موجب کاهش چشمگیر سطح مخصوص کاتالیست‌ها می‌شود که این امر به دلیل اشغال سطح و همچنین خلل و فرج ساختار کاتالیست می‌باشد. همچنین، با تغییر نسبت  $\text{Ni}/\text{Co}$  از ۵ به ۳ سطح مخصوص به میزان محسوسی کاهش می‌یابد که مطابق انتظار، به دلیل پوشانده شدن سطح نمونه‌ها با Co می‌باشد.

نتایج تصویربرداری با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی برای نمونه‌های سنتزی در شکل ۴ نشان داده شده است. در تصویر مربوط به کاتالیست  $\text{Ni-Co}/\text{Al}_2\text{O}_3$  با نسبت  $\text{Ni}/\text{Co}$  برابر با ۵، تأثیر افزودن کبالت به عنوان تقویت‌کننده فاز فعال مشهود

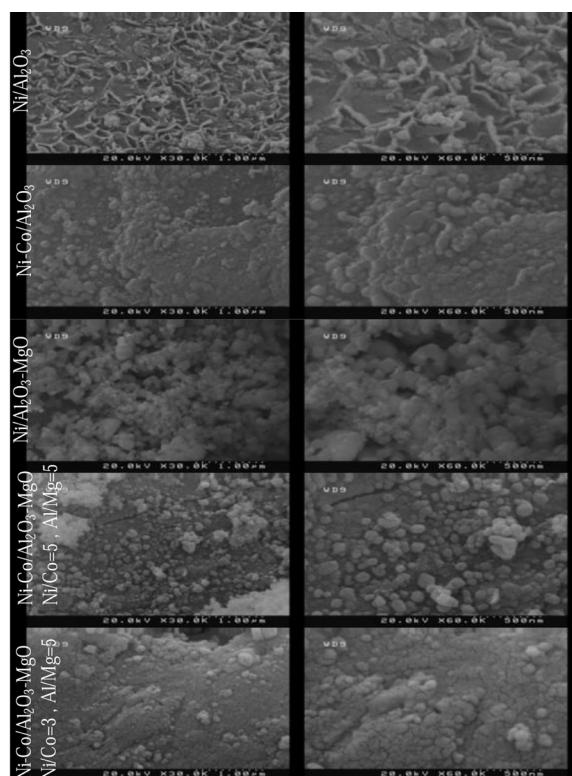


شکل ۳ اندازه‌گیری سطح مخصوص کاتالیست‌های سنتزی  $\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  بنیان.

همچنین مشاهده می‌شود که نسبت  $H_2/CO$  با افزایش دما افزایش می‌یابد که به علت گرما گیر بودن فرآیند می‌باشد و علت این که در دماهای بالاتر، فعالیت کاتالیست‌ها مشابه هم می‌شوند به علت نزدیک شدن به حالت تعادل است.



**شکل ۵** ارزیابی عملکرد کاتالیست‌های سنتزی  $Ni/Al_2O_3-MgO$  (Cat 3) و  $Ni/Al_2O_3$  (Cat 1)،  $Ni-Co/Al_2O_3$  (Cat 2) الف: تبدیل متان، ب: بازدهی هیدروژن، ج: نسبت  $H_2/CO$ . در **شکل ۶** نتایج بررسی تاثیر استفاده همزمان از تقویت‌های فاز فعال و پایه نشان داده شده است. با توجه به ترمودینامیک واکنش و گرماگیر بودن آن، با افزایش دما میزان درصد تبدیل افزایش می‌یابد و در دمای  $800^\circ C$ ، به دلیل نزدیک شدن به تعادل، کاتالیست‌ها رفتار مشابهی از هم نشان می‌دهند. کاتالیست  $Ni-Co/Al_2O_3-MgO$  با نسبت  $Ni/Co = 5$  فعالیت بالاتری نسبت به کاتالیست سنتزی با نسبت  $Ni/Co = 3$  از خود نشان می‌دهد که میتواند به دلیل مورفولوژی خاص سطح باشد.



شکل ۴ آنالیز FESEM کاتالیست‌های سنتزی  $Ni/Al_2O_3$  بنیان.

### تست‌های ارزیابی عملکرد کاتالیست‌های سنتزی

همان‌طور که قبلاً اشاره شده است، آزمایش‌های ارزیابی فعالیت کاتالیست‌ها در بازه دمایی  $800^\circ C$  -  $500^\circ C$  و با نسبت خوراک  $CH_4/CO_2 = 1$  و سرعت فضایی گاز برابر با  $24 L/g.h$  انجام شده است. تأثیر تقویت کننده‌ها روی عملکرد کاتالیست  $Ni/Al_2O_3$  در **شکل ۵** نشان داده شده است. مشاهده می‌شود که افزودن اکسید منیزیم به ساختار کاتالیست باعث شده است تا از فعالیت کاتالیست کم شود، که این مورد به دلیل کاهش سطح ویژه کاتالیست در اثر افزودن اکسید منیزیم می‌باشد. همچنین کاهش حجم حفره‌های سطح کاتالیست سنتزی نیز، این موضوع را تأیید می‌نماید. از سوی دیگر، افزودن کبالت به عنوان تقویت کننده فعال، باعث بهبود فعالیت کاتالیست می‌شود. با مقایسه عملکرد کاتالیست  $Ni/Al_2O_3$  و کاتالیست  $Ni-Co/Al_2O_3$  با نسبت  $Al/Mg$  برابر با ۵ مشاهده شده است که افزودن تقویت کننده به پایه کاتالیست در دماهای پایین، موجب بهبود عملکرد آن می‌شود.

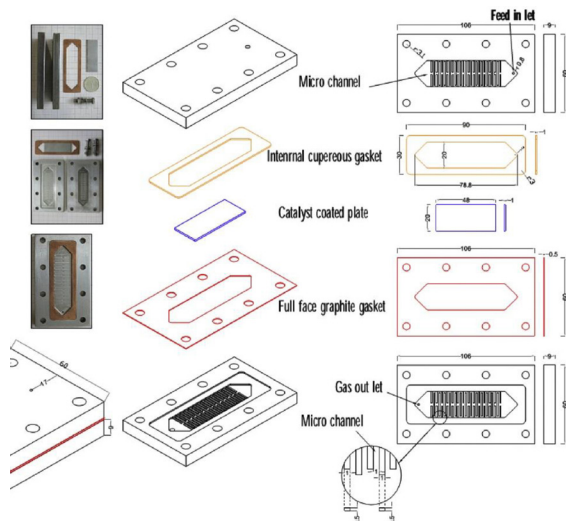


### نتیجه گیری

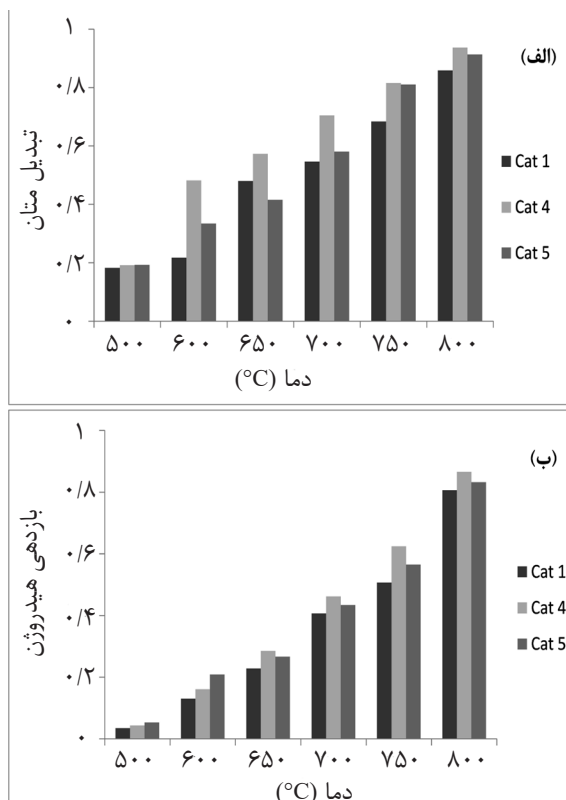
کاتالیست Ni/Co فعالیت قابل قبولی در فرآیند ریفرمینگ خشک متان از خود نشان می‌دهد، اما غیرفعال شدن در طول فرآیند، یکی از چالش‌های آن می‌باشد. استفاده از کبالت به عنوان تقویت کننده فاز فعال و همچنین استفاده از اکسید منیزیم برای تقویت فاز فعال، باعث بهبود فعالیت و پایداری شدن آن می‌گردد. همچنین استفاده همزمان از تقویت کننده‌های فاز فعال و پایه، عملکرد کالیست سنتزی Ni-Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-MgO به طور چشمگیری بهبود پیدا می‌کند. که این امر را می‌توان به دلیل تاثیر کبالت در اصلاح ساختار سطح و تاثیر اکسید منیزیم در مقاومت حرارتی کاتالیست دانست.

### تشکر و قدردانی

نویسندگان بر خود لازم میدانند از دانشگاه رازی کرمانشاه به دلیل حمایت‌های مالی و در اختیار قرار دادن تجهیزات آزمایشگاهی صمیمانه تشکر و قدردانی نمایند.

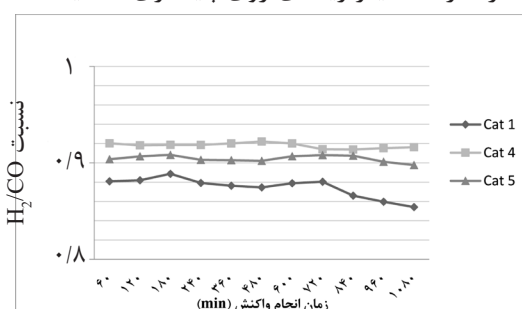


شکل پیوست الف نمای کلی میکروراکتور مورد استفاده [۲۱].



شکل ۶ ارزیابی عملکرد کاتالیست‌های سنتزی Ni / (Cat 1) و Ni-Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-MgO (Cat 4) با ترکیب درصد Ni/Co = ۵ و Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> و Ni-Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-MgO (Cat 5) با ترکیب درصد Ni/Co = ۵ و Co و Ni-Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-MgO (Cat 5) با ترکیب درصد Ni/Co = ۳ و Ni/Co = ۵. الف: تبدیل متان، ب: بازدهی هیدروژن

نتیجه آزمایش پایداری برای کاتالیست‌های سنتزی نیز در شکل ۷ نمایش داده شده است. واضح است که بعد از ۱۰۸۰ min انجام واکنش، که کاتالیست‌های تقویت شده فعالیت پایداری از خود نشان داده‌اند. علاوه بر تاثیر منیزیم اکسید روی مقاومت حرارتی کاتالیست، اصلاح مورفولوژی سطح کاتالیست به دلیل حضور کبالت و گسترده شدن تابع توزیع اندازه ذرات تاثیر زیادی روی پایداری کاتالیست دارد.



شکل ۷ تست پایداری کاتالیست‌های سنتزی Ni / Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (Cat 1) و Ni-Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-MgO (Cat 4) با ترکیب درصد Ni/Co = ۵ و Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> و Ni-Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-MgO (Cat 5) با ترکیب درصد Ni/Co = ۵ و Ni-Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-MgO (Cat 5) با ترکیب درصد Ni/Co = ۳ و Ni/Co = ۵.



## مراجع

- [1]. Bhattar S, Abedin M A, Kanitkar S, Spivey J J (2020) A review on dry reforming of methane over perovskite derived catalysts, *Catalysis Today*, 365, 2-23.
  - [2]. Jurković D L, Liu J L, Pohar A, Likozar B (2021) Methane dry reforming over Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalyst in spark plasma reactor: linking computational fluid dynamics (CFD) with reaction kinetic modelling, *Catalysis Today* 36: 11-21.
  - [3]. Shi X, Zhang X, Wang F, Yang L, Dong Y, Shuai Y (2021) Thermochemical analysis of dry methane reforming hydrogen production in biomimetic venous hierarchical porous structure solar reactor for improving energy storage, *International Journal Of Hydrogen Energy*, 46: 7733-7744.
  - [4]. Carapellucci R, Giordano L (2020) Steam, dry and auto thermal methane re forming for hydrogen production: A thermodynamic equilibrium analysis, *Journal of Power Sources*, 469: 228-391.
  - [5]. Ma Q, Guo L, Fang Y, Li H, Zhang J, Zhao T S, Tsubaki N (2019) Combined methane dry reforming and methane partial oxidization for syngas production over high dispersion Ni based mesoporous catalyst, *Fuel Processing Technology*, 188: 98-104.
  - [6]. Pérez J M M, Carlos J Lucio-Ortiz, Javier R de la R, Carolina S M, David A. De H Del Río, Ladislao Sandoval-Rangel, M. A. Garza-Navarro, Daniela X. M-V, and Francisco J M-L (2021) Dry reforming of methane for hydrogen production using bimetallic catalysts of pt-fe supported on  $\gamma$ -alumina, *The Journal of Chemistry Select*, 45: 12685-12695.
  - [7]. Wei Q, Yang G, Gao X, Yamane N, Zhang P, Liu G, Tsubaki N (2017) Ni/Silicalite-1 coating being coated on SiC foam: A tailor-made monolith catalyst for syngas production using a combined methane reforming process, *Chemical Engineering Journal*, 327: 465-473.
  - [8]. Dou J, Zhang R, Hao X, Bao Z, Wu T, Wang B, Yu F (2019) Sandwiched SiO<sub>2</sub>@Ni@ZrO<sub>2</sub> as a coke resistant nanocatalyst for dryreforming of methane, *Applied Catalysis B: Environmental*, 254: 612-623.
  - [9]. Li L, Chen J, Zhang Q, Yang Z, Sun Y, Zou G (2020) Methane dry reforming over activated carbon supported Ni-catalysts prepared by solid phase synthesis, *Journal of Cleaner Production*, 274: 122-126.
  - [10]. Bawornruttanaboonya K, Devahaştin S, Mujumdar A S, Laosiripojana N (2018) Comparative evaluation of auto thermal reforming of biogas into synthesis gas over bimetallic Ni-Re/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalyst in fixed-bed and coated-wall micro reactors: A computational study, *International journal of hydrogen energy*, 43: 13237-13255.
  - [11]. Yahyavi S R, Haghighi M, Shafiei S, Abdollahifar M, Rahmani F (2015) Ultrasound-assisted synthesis and physicochemical characterization of Ni-Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-MgONano catalysts enhanced by different amounts of MgO used for CH<sub>4</sub>/CO<sub>2</sub> reforming, *Energy Conversion and Management*, 97: 273-281.
  - [12]. Abdollahifar M, Haghighi M, Sharifi M (2015) Dry reforming of methane over nanostructured Co/Y catalyst for hydrogen production: Effect of ultrasound irradiation and Co-loading on catalyst properties and performance, *Energy Conversion and Management*, 103: 1101-1112.
  - [13]. Estephane J, Aouad S, Hany S, El Khoury B, Gennequin C, El Zakhem H, Abi Aad E (2015) CO<sub>2</sub> reforming of methane over Ni-Co/ZSM5 catalysts, Aging and carbon deposition study, *International Journal of Hydrogen Energy*, 40: 9201-9208.
  - [14]. Jurković D L, Liu J L, Pohar A, Likozar B (2020) Methane dry reforming over Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalyst in spark plasma reactor: linking computational fluid dynamics (CFD) with reaction kinetic modelling, *Catalysis Today*, 362, 11-21.
  - [15]. Horváth A, Németh M, Beck A, Maróti B, Sáfrán G, Pantaleo G, La Parola V (2021) Strong impact of indium promoter on Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and Ni/CeO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalysts used in dry reforming of methane, *Applied Catalysis A, General*, 621: 118-124.
  - [16]. Neuberg S, Pennemann H, Shanmugam V, Zapf R, Kolb G (2021) Promoting effect of Rh on the activity and stability of Pt-based methane combustion catalyst in micro reactors, *Catalysis Communications*, 149: 106-112.
  - [17]. Xie T, Zheng H Y, Xu K D, Zhang Z Y, Yang B L, Yu B (2021) High performance Ni-based porous catalytically activated absorbers and establishment of kinetic model for complex solar methane dry reforming reaction system, *Chemical Engineering Science*, 239: 116-125.
  - [18]. Wang F, Wang Y, Zhang L, Zhu J, Han B, Fan W, Shi W (2021) Performance enhancement of methane dry reforming reaction for syngas production over Ir/Ce<sub>0.9</sub>La<sub>0.1</sub>O<sub>2</sub>-nanorods catalysts, *Catalysis Today*, 355: 502-511.
  - [19]. Chen J, Yan L, Song W, Xu D (2017) Methane steam reforming thermally coupled with catalytic combustion in catalytic microreactors for hydrogen production, *International Journal of Hydrogen Energy* 45: 1-17.
  - [20]. Sangsong S, Phongaksorn M, Tungkamani S, Sornchamni T, Chuvaree R (2015) Dry methane reforming performance of Ni-based catalyst coated onto stainless steel substrate, *Energy Procedia*, 79: 137 - 142.
- Rezaei R, Moradi G (2018) Study of the performance of dry methane reforming in a microchannel reactor using sputtered Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> coating on stainless steel, *International Journal of Hydrogen Energy*, 52: 1-12.

# بررسی رخساره‌ها، فرآیندهای دیاژنز و محیط رسوبی سازند شورجه در میدان گازی خانگیران

زهرا مشایخی<sup>۱</sup>، علی کدخدایی<sup>۲\*</sup>، علی سلگی<sup>۱</sup>، سید احمد بابازاده<sup>۳</sup> و سید محسن آل علی<sup>۱</sup>

۱- گروه علوم زمین، دانشکده علوم و فناوری‌های همگرا، دانشگاه آزاد اسلامی، واحد علوم و تحقیقات، تهران، ایران.

۲- گروه علوم زمین، دانشکده علوم طبیعی، دانشگاه تبریز، ایران.

۳- گروه علوم زمین، دانشکده علوم پایه، دانشگاه پیام نور، تهران، ایران

تاریخ دریافت: ۱۴۰۰/۰۸/۲۵ تاریخ پذیرش: ۱۴۰۱/۰۲/۱

## چکیده

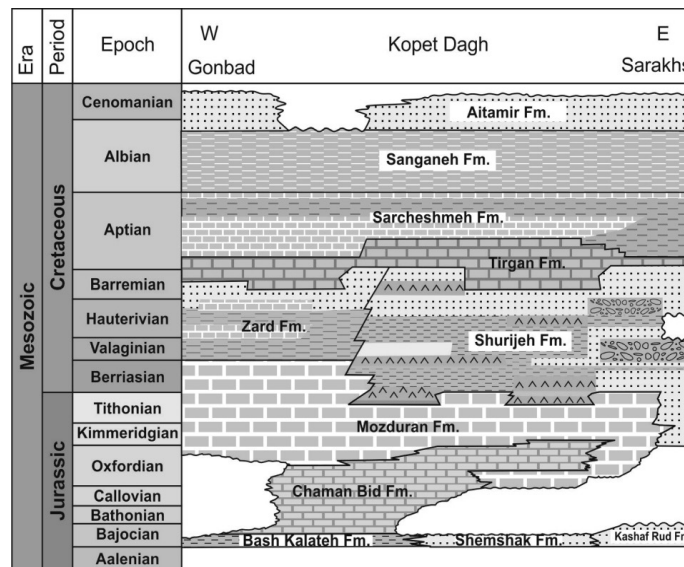
سازند شورجه در حوضه رسوبی کپه داغ نهشته شده و یکی از سنگ‌های مخزن گازی در شمال خاور ایران است. میدان گازی خانگیران با یک ساختار شمال غربی جنوب شرقی در بخش شمال شرقی استان خراسان رضوی واقع شده است. هدف از این مطالعه بررسی رخساره‌ها، محیط رسوبی و فرآیندهای دیاژنتیکی است که بر کیفیت مخزنی سازند شورجه در چاه‌های مورد مطالعه موثر بوده‌اند. بررسی پتروگرافی ۴۸۰ عدد مقطع نازک سازند شورجه در چاه‌های مورد مطالعه منجر به شناسایی ۹ رخساره رسوبی شامل کنگلومرای ماسه‌ای، کوارتز آرنایت، ساب لیتارنایت، ساب آرکوز، کوارتز وک، رس‌سنگ/ شیل، انیدریت نودولار، دولومادستون ماسه‌ای و دولوگرینستون ماسه‌ای متعلق به پهنه‌های جزر و مدی، رودخانه‌ای، دشت سیلابی و رسوبی مئاندردی شده است. مطالعات پتروگرافی مقاطع نازک میکروسکوپی نشان می‌دهد که فرآیندهای دیاژنزی در سه محیط دریایی، جوی و تدفینی، سازند شورجه را تحت تأثیر قرار داده‌اند. از فرآیندهای دیاژنتیکی اثر گذار در رخساره‌های سازند شورجه می‌توان به سیمانی‌شدن، آشفستگی زیستی، دولومیتی‌شدن اولیه، انیدریتی‌شدن، تخلخل، شکستگی، تراکم و انحلال اشاره کرد. در نهایت با استفاده از نمودار تصویرگر، نمودار پتروفیزیکی و تلفیق نتایج حاصل از مطالعات مقاطع نازک در چاه کلیدی چاه‌های مورد مطالعه میدان خانگیران مشخص گردید که در اکثر موارد انطباق خوبی بین نتایج حاصل از نمودار تصویرگر، مقاطع نازک و نمودار پتروفیزیکی وجود دارد.

**کلمات کلیدی:** میدان گازی خانگیران، رخساره‌ها، فرآیندهای دیاژنز، محیط رسوبی، نمودار پتروفیزیکی و نمودار تصویرگر

## مقدمه

و شمال افغانستان را نیز در بر می‌گیرد [۱]. سازند شورجه به سن کرتاسه پیشین (نئوکومین-بارمین) متشکل از رخساره‌های غالب آواری سرخ رنگ و کربناتی است که در حوضه کپه داغ گسترش دارد (شکل ۱).

پهنه رسوبی ساختاری کپه داغ در شمال خاور ایران واقع شده است. این پهنه بخش‌هایی از ترکمنستان

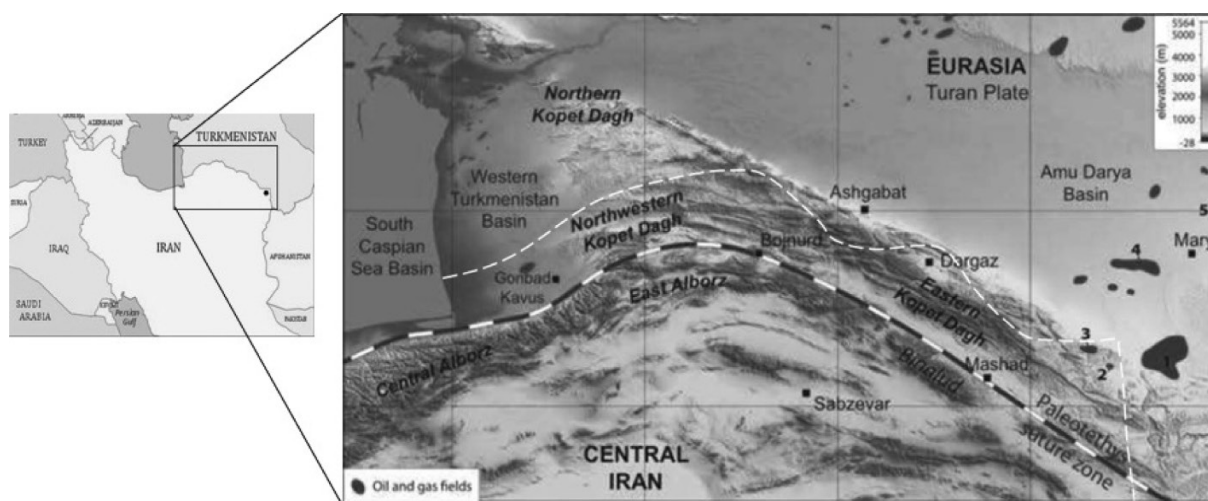


شکل ۱ ستون چینه‌شناسی ژوراسیک پسین-کرتاسه پیشین در حوضه کپه داغ [۴]

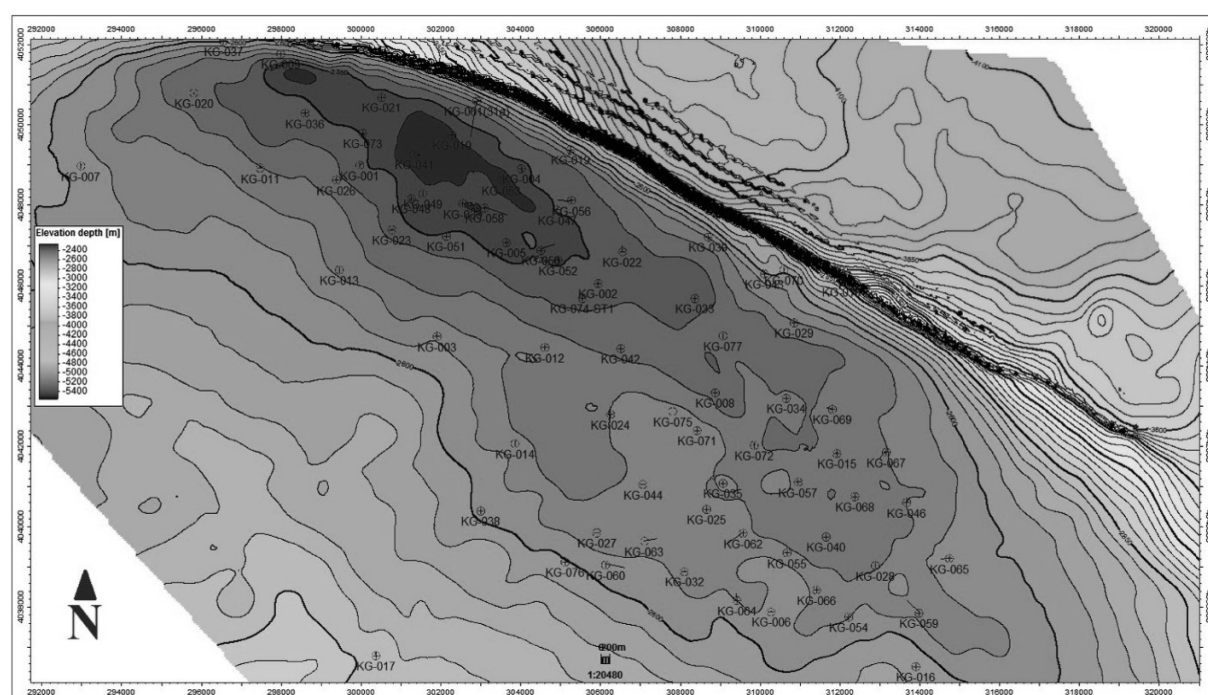
C به‌طرف چاه‌های شمال غربی میدان افزایش می‌یابد. ضخامت زون D از چاه‌های جنوب شرقی میدان به‌سمت چاه‌های شمال غربی کاهش می‌یابد. میزان تخلخل در زون‌های D1 و D2 سازند شوريجه از غرب به شرق افزایش پیدا می‌کند. زون E نیز تغییرات قابل توجهی در کل میدان ندارد [۴]. سازند شوريجه برای اولین بار توسط افشارحرب و انصاری در روستای شوريجه در شرق شهر مشهد تعریف شد و برش دره خور با ضخامت ۹۸۰ m در مسیر مشهد-کلات نادری به‌عنوان برش الگو تعریف شد [۵]. رضا نداف‌کهنه قوچان و همکاران به بررسی مطالعات لیتواستراتیگرافی و پتروگرافی سازند شوريجه در منطقه مورد مطالعه پرداختند. نتایج مطالعات آن‌ها نشان داد سازند شوريجه محیط مردابی-دریایی در این منطقه داشته و رخساره‌های مقطع چشمه گیلان بیانگر محیطی قاره‌ای-مردابی است، در مقطع دره خور، سازند تحت تأثیر وضعیتی قاره‌ای-مردابی بوده و بالاخره رسوبات سازند شوريجه در گردنه مزدوران در یک محیط رودخانه‌ای تشکیل شده‌اند [۶].

توالی‌های ماسه‌ای این سازند در ایران، بخش مخزنی میادین گازی ناحیه سرخس (خانگیران و گنبدلی) را تشکیل می‌دهد و معادل آن (سازندهای کارابیل<sup>۱</sup>، الموراد<sup>۲</sup> و شاتلیک<sup>۳</sup>) سنگ مخزن مهم گاز در ترکمنستان (به‌ویژه در میادین دولت آباد و بایراملی) هستند [۲]. میدان گازی خانگیران یکی از میادین مهم واقع در شمال شرق ایران در حوضه کپه داغ است (شکل ۲). این میدان با ساختار شمال غربی-جنوب شرقی در بخش شمال شرقی استان خراسان رضوی، در نزدیکی مرز جغرافیایی با کشور ترکمنستان، در ۲۵ km شمال غربی سرخس و ۱۸۰ km شمال شرقی مشهد قرار دارد [۴]. ضخامت سازند شوريجه در میدان گازی خانگیران از شمال غرب به جنوب شرق روند کاهشی را نشان می‌دهد (شکل ۳). این تغییر ضخامت بیشتر مربوط به زون‌های A و C است و به‌طور مساوی بین آن‌ها تقسیم شده است. ضخامت زون‌های D و B در این روند تقریباً ثابت است. زون A در سازند شوريجه که پوشاننده سازند مزدوران است تغییر ضخامت قابل توجهی در کل میدان ندارد. زون B یک روند افزایشی به‌طرف چاه‌های غربی و جنوب غربی میدان را نشان می‌دهد. میزان تخلخل در زون B سازند شوريجه از غرب به شرق کاهش پیدا می‌کند. ضخامت زون

1. Karabil Fm  
2. Almurad Fm  
3. Shatlyk Fm



شکل ۲ محل میدان خانگیران در شمال شرق ایران و محل میدان‌های گاز، میادین اصلی گاز شامل: ۱- دولت آباد، ۲- گنبدلی، ۳- خانگیران، ۴- شاتلیک؛ ۵- بایرام علی، خط سفید: مرز کشورها [۳]



شکل ۳ محل حفاری چاه‌های میدان خانگیران روی خطوط هم‌تراز زیر سطحی سازند شورجه

مریم مرتضوی مهریزی و همکاران به بررسی محیط رسوبی و دیاژنز سازند شورجه در منطقه مورد نظر پرداختند. نتایج مطالعات آن‌ها منجر به تشخیص دو مجموعه رخساره آواری و رخساره کربناته مرتبط با دشت ساحلی گردید. رخساره‌های مذکور در محیط رسوبی قاره‌ای- حدواسط (دشت ساحلی) نهشته شده‌اند.

پریسا طباطبایی و همکارانش به بررسی رخساره‌ها و محیط رسوبی سازند شورجه، خاور حوضه رسوبی کپه داغ پرداختند. نتایج تحقیقات آن‌ها منجر به شناسایی رخساره‌های سیلیسی آواری و تبخیری سازند شورجه در برش‌های مورد مطالعه شده است. این رخساره‌ها در محیط رسوبی رودخانه‌های بریده بریده، مئاندری و دریاچه‌ای نهشته شده‌اند [۷].



آن‌ها براساس طبقه‌بندی مایال تفسیر شده است. همچنین، انواع فرآیندهای دیاژنزی در سازند شوربجه شناسایی شده و تأثیر آن‌ها بر روی کیفیت مخزنی مورد بحث قرار گرفته است. برای بررسی خصوصیات پتروفیزیکی و نمودارهای تصویرگر جهت انطباق با نتایج حاصل از مقاطع نازک از نرم‌افزار ژئولاگ<sup>۵</sup> استفاده شده است.

### بررسی رخساره‌ها در سازند شوربجه

براساس مطالعات میکروسکوپی انجام شده بر روی مقاطع نازک توالی سازند شوربجه در چاه‌های مورد مطالعه، ۹ رخساره سنگی اصلی شامل کنگلومرای ماسه‌ای، کوارتز آرنایت، ساب لیتارنایت، ساب آرکوز، کوارتز وک، رس‌سنگ/ شیل، انیدریت نودولار، دولومادستون ماسه‌ای و دولوگرینستون ماسه‌ای شناسایی گردیده است.

#### میکروکنگلومرا

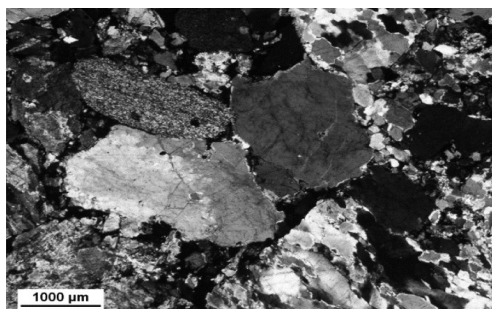
این پتروفاسیس در بخش قاعده زون B توالی سازند شوربجه قابل مشاهده است که متشکل از ذرات دانه درشت چرت و کوارتز پلی کریستالین نیمه گرد شده دارای پوشش هماتیتی است (شکل ۴). اجزای دیگر در این رخساره شامل خرده‌های ماسه‌سنگی، کربناته و گاهی سنگ‌های دگرگونی درجه پایین هستند. جورشدگی قطعات ضعیف تا متوسط است. مهم‌ترین سیمان‌های مشاهده شده در این رخساره سیمان سیلیسی، کلسیتی و دولومیتی آغشته به اکسید آهن همراه با سیمان انیدریتی هستند. این رخساره به‌صورت تناوبی از کنگلومرا تا کنگلومرای ماسه‌ای و ماسه سنگ درشت دانه گراولی در زون B در چاه‌های مختلف مشاهده شده است. که در بخش بالایی این افق به ماسه متوسط تا زیر دانه، شیل رسی و سیلتی انیدریت‌دار تبدیل می‌گردد.

همچنین، بررسی‌های پتروگرافی صورت گرفته توسط آن‌ها نشان داد که فرآیندهای دیاژنتیکی این سنگ‌ها در سه رژیم آئوژنیک<sup>۱</sup>، مزوژنیک<sup>۲</sup> و تلوزنیک<sup>۳</sup> ساخته شده است. این فرآیندها در سنگ‌های سیلیسی آواری شامل فشردگی فیزیکی و شیمیایی، سیمانی‌شدن، هماتیتی شدن، دگرسانی، انحلال و جاننشینی فلدسپات، ایجاد شکستگی و پرشدگی رگه است. در سنگ‌های آهکی مورد مطالعه فرآیندهای دیاژنتیکی شامل فشردگی فیزیکی و شیمیایی، میکریتی شدن، آشفستگی‌زیستی<sup>۴</sup>، سیمانی‌شدن کلسیتی، دولومیتی‌شدن، نئومورفیسم، پیدایش شکستگی و پرشدگی رگه است [۸]. مریم منصوری هفشجانی و همکاران به کاربرد نمودارهای تصویرگر در شناسایی ویژگی‌های رخساره‌های رسوبی و پدیده‌های دیاژنزی پرداختند و نتیجه گرفتند نمودارهای تصویرگر در موارد بسیاری با نمونه‌های مغزه و مقاطع نازک مطابقت داشتند [۹]. هدف از این مطالعه تشخیص و تفکیک رخساره‌ها، محیط رسوبی، ارائه مدل رسوبی و همچنین مهم‌ترین فرآیندهای دیاژنتیکی است که بر کیفیت مخزنی سازند شوربجه در چاه‌های مورد مطالعه مؤثر بوده‌اند. آگاهی دقیق از این پارامترها به متخصصین این امکان را می‌دهد که برای بررسی دقیق مراحل تولید در یک میدان اطلاعات کافی در اختیار داشته باشند و با آگاهی از آن‌ها توانایی بیشتری در توسعه میادین نفتی خواهند داشت.

### روش مطالعه

در این مطالعه جهت دستیابی به اهداف تحقیق، تعداد ۴۸۰ عدد مقطع نازک میکروسکوپی از ۵ چاه مورد مطالعه سازند شوربجه تحت بررسی‌های پتروگرافی قرار گرفت. این مقاطع به‌طور عمده (بیش از ۸۰٪) از خرده‌های حفاری بوده و فواصل نمونه‌برداری از ۳۰ cm تا ۱/۵ m متغیر است. نام‌گذاری رخساره‌های آواری براساس طبقه‌بندی فولک و پتی جان و صورت گرفته و شرایط محیطی

1. Eogenic  
2. Mesogenic  
3. Telogenic  
4. Bioturbation  
5. Geolog



شکل ۴ میکروکنگلوмера

دانه‌های چرت کوارتز چند بلوری، کوارتز دارای خاموشی موجی، فلدسپات‌های تجزیه شده، خرده سنگ‌های کربناته و فلدسپار (کلسیم‌دار) هستند (شکل ۶). میزان ذرات کوارتز در این پتروفاسیس ۵۰ تا ۶۰٪ است. ذرات لیتارنایت‌ها به‌طور معمول فشرده بوده و دارای سطوح تماسی محدب مقعر و گاهی اوقات مضرس هستند. این پتروفاسیس به‌طور عمده در زون‌های B و D و به‌صورت میان لایه‌های نازکی در بخش‌هایی از زون C نیز مشاهده شده است. ساب لیتارنایت‌ها بیانگر حمل و نقل اندک و نرخ بالای رسوب‌گذاری هستند [۱۱].

#### ساب آرکوز

در تعداد اندکی از نمونه‌ها پتروفاسیس ساب آرکوز که اندازه ذرات آن در حد ماسه ریز تا ماسه متوسط است، مشاهده شده است. این پتروفاسیس‌ها به‌طور معمول زاویه‌دار بوده و جورشدگی خوبی دارند. اجزای اصلی سازنده این پتروفاسیس شامل کوارتز (با رشد اضافی هم محور)، فلدسپار (۱۰ تا ۱۵٪) و به‌میزان کمتر کانی‌های سنگین (۲ تا ۳٪) هستند (شکل ۷). این پتروفاسیس دارای مقادیر زیادی اکسید آهن در زمینه بوده و از نظر بلوغ بافتی و کانی‌شناسی، این پتروفاسیس در حد نابالغ تا نیمه‌بالغ است. این پتروفاسیس در زون‌های B و D مشاهده شده است.

این پتروفاسیس به‌سمت چاه‌های بخش شمال غربی میدان به‌صورت ماسه گراولی تغییر رخساره می‌دهد. این پتروفاسیس به‌صورت نهشته‌های برجای مانده<sup>۱</sup> پیش‌رونده در بخش پایینی زون B در چاه‌های مختلف مشاهده شده و از نظر محیط تشکیل، به بخش پرانرژی رودخانه‌های بریده بریده شامل پشته‌های طولی<sup>۲</sup> و رسوبات غربال شده<sup>۳</sup> حاصل از مهاجرت جانبی کانال‌ها نسبت داده می‌شود [۱۰].

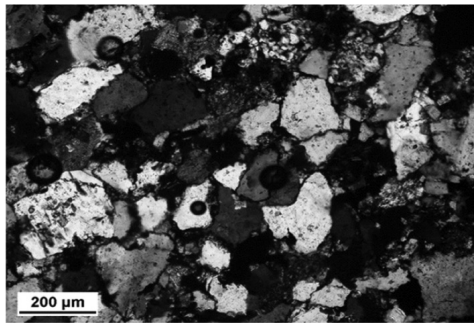
#### کوارتز آرنایت

اجزای اصلی تشکیل‌دهنده این پتروفاسیس، به‌طور عمده از ذرات دانه ریز تا متوسط کوارتز، با جورشدگی متوسط تا خوب و نیمه زاویه‌دار تشکیل شده است (شکل ۵). سایر اجزای فرعی شامل چرت، گلاکونیت، مسکوویت و کانی‌های سنگین هستند. ماتریکس نیز در این پتروفاسیس وجود نداشته یا در تعدادی از نمونه‌ای ۲ تا ۳٪ است. مهم‌ترین سیمان‌های موجود در این پتروفاسیس شامل سیمان سیلیسی (به‌صورت رشد اضافه در اطراف ذرات و سیمان بین دانه‌ای)، سیمان کلسیتی (به شکل بین دانه‌ای و پوکیلو توپیک<sup>۴</sup>) و گاهی سیمان دولومیتی پرکننده فضاهای خالی است. ذرات کوارتز در برخی موارد تا حد زیادی فشرده شده و دارای مرزهای مضرس هستند [۲]. این پتروفاسیس به‌طور عمده در زون D و به‌صورت میان لایه‌های نازکی در بخش‌هایی از زون‌های B و C نیز مشاهده شده است.

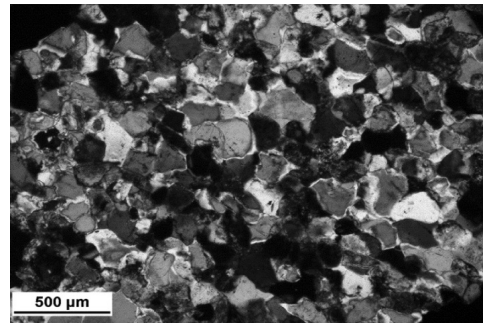
#### ساب لیتارنایت

ذرات تشکیل‌دهنده در ساب لیتارنایت‌ها شامل

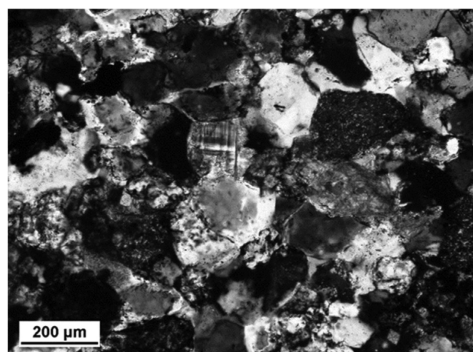
1. Lag Deposit
2. Longitudinal Bars
3. Sieve Deposits
4. Poikilotopic



شکل ۶ ساب لیتارنایت



شکل ۵ کوارتز آرنایت به همراه سیمان‌های بین دانه‌ای کربناته و رو رشدی سیلیس



شکل ۷ ساب آرکوز

### کوارتزوک

پتروفاسیس ماسه‌ای کوارتزوک به‌طور عمده از ذرات کوارتز (۴۰ تا ۶۰٪) تک بلور با خاموشی مستقیم در زمینه بسیار دانه ریز از رس هماتیته که گاهی کمی آهکی هستند، تشکیل شده است. ذرات کوارتز دارای جورشدگی ضعیف و زاویه‌دار هستند (شکل ۸). میزان ماتریکس در این پتروفاسیس از ۱۵ تا ۴۵٪ متغیر است که در برخی از نمونه‌ها با آشفستگی زیستی همراه است. این پتروفاسیس به‌طور عمده در زون D همراه با رخساره‌های شیلی مشاهده شده است.

### رس سنگ/ شیل

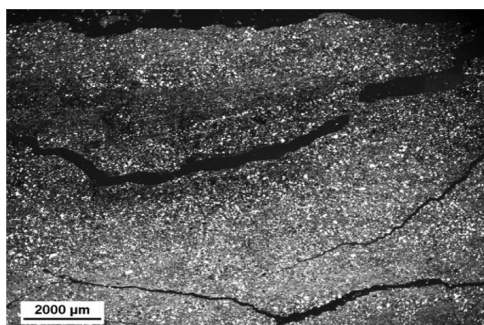
این پتروفاسیس در توالی سازند شورجه در چاه‌های مورد مطالعه به‌صورت رس سنگ قرمز رنگ و هماتیته وجود دارد (شکل ۹). بخش عمده رس سنگ قرمز رنگ از ذرات رس، مقداری سیلت و ماسه ریز تشکیل شده و دارای بافت توده‌ای و گاهی لامیناسیون ضعیف و آثار آشفستگی زیستی است.

ذرات کوارتز در اندازه سیلت تا ماسه ریز دانه به فرم زاویه‌دار تا نیمه زاویه‌دار در اکثر مقاطع قابل مشاهده هستند. در برخی مقاطع ذرات زاویه‌دار تا نیمه زاویه‌دار کوارتز در اندازه سیلت مشاهده شده است. در برخی دیگر به‌علت فراوانی کانی‌های ورقه‌ای، این پتروفاسیس به شیل‌های ماسه‌ای - سیلتی تغییر رخساره داده است. رس سنگ قرمز به‌طور عمده در زون‌های E و A و همچنین به‌صورت متناوب با پتروفاسیس ماسه‌سنگ در زون‌های D و C سازند شورجه مشاهده می‌شود.

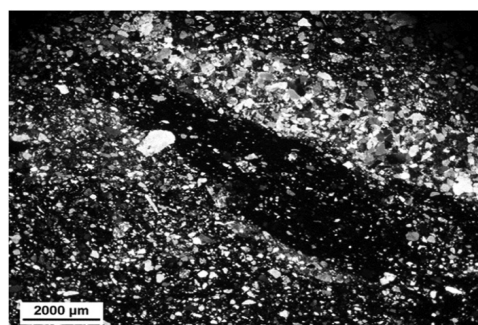
### انیدریت نودولار

این رخساره به‌صورت ترکیبی از بلورهای درشت و رشته‌ای انیدریت قابل مشاهده است (شکل ۱۰). در مواردی نیز آثاری از بلورهای ریز دولومیت در زمینه وجود دارد. این رخساره به‌طور عمده به‌صورت نودول انیدریتی وجود دارد. در برخی موارد این رخساره دارای ساخت توده‌ای است و گاهی با پیریت همراهی دارد.

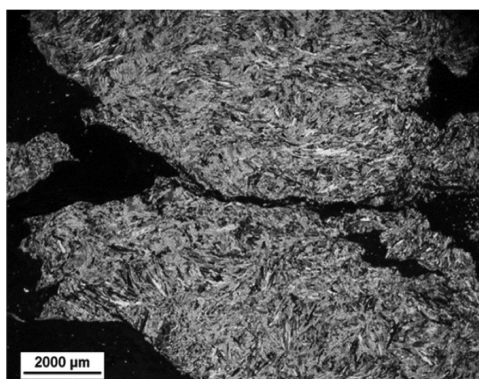




شکل ۹ رس سنگ دارای ذرات پراکنده سیلت



شکل ۸ کوارتز وک با جورشدگی ضعیف و آشفته‌گی زیستی



شکل ۱۰ انیدریت نودولار

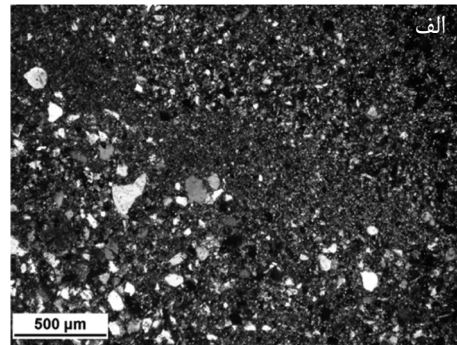
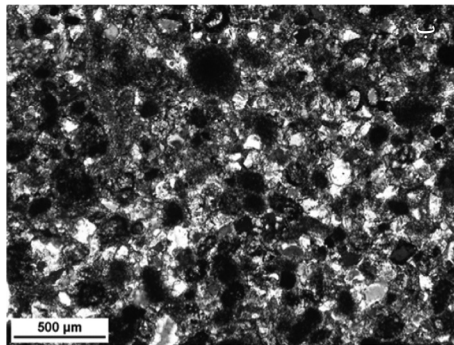
کوارتزی و دارای فابریک مماسی هستند. در برخی مقاطع اوویدها آغشته‌گی زیادی با اکسید آهن پیدا کرده‌اند که بیانگر شرایط اکسیدان در زمان رسوبگذاری آن‌ها می‌باشد. مهم‌ترین سیمان موجود در این پتروفاسیس، سیمان کلیستی دور دانه‌ای در اطراف ذرات اووید و پرکننده فضاهای خالی است. اجزای فرعی شامل پیریت و در مواردی انیدریت می‌باشد. وجود بیوکلسیت‌های نامشخص (دوکفه‌ای) از دیگر اجزای با فراوانی اندک در این رخساره است. رخساره دولومادستون ماسه‌ای در بخش‌هایی از زون C، ابتدای زون‌های A و E وجود دارد که به‌نظر می‌رسد گسترش آن به‌سمت شمال شرقی میدان بیشتر می‌باشد. پتروفاسیس دولوگرینستون اوویدی ماسه‌ای در اکثر چاه‌های مورد مطالعه در بخش‌های میانی و بالایی زون C مشاهده شده است. ضخامت این رخساره متغیر بوده و به‌طور کلی، از سمت جنوب شرقی به شمال غربی میدان خانگیران، افزایش می‌یابد.

1. Ooid

تراکم و پهن شدگی نودول‌ها از فرآیندهای قابل ذکر دیاژنزی در این رخساره است. انیدریت به‌طور غالب در زون‌های A و C مشاهده شده است.

#### رخساره‌های هیبرید (کربناته - آواری)

رخساره هیبرید در مقاطع مورد مطالعه به دو صورت دولومادستون ماسه‌ای و دولوگرینستون اوویدی<sup>۱</sup> ماسه‌ای مشاهده شده است (شکل ۱۱). رخساره دولومادستون ماسه‌ای متشکل از ذرات آواری کوارتز بوده که در یک زمینه دولومیتی پراکنده هستند (شکل ۱۱-الف). دولومیتی‌شدن در این رخساره در مراحل اولیه دیاژنز اتفاق افتاده چون اندازه بلورهای دولومیت در حد میکرایت تا میکرواسپار است. ذرات کوارتز تشکیل‌دهنده جورشدگی پایین داشته و زاویه‌دار هستند. پیریت و در مواردی نودول‌های انیدریت به‌میزان کم در این رخساره مشاهده شده است. ذرات اصلی تشکیل‌دهنده رخساره دولوگرینستون ماسه‌ای شامل اووید و کوارتز در یک زمینه آهک دولومیتی تا دولومیتی می‌باشد (شکل ۱۱-ب). اوویدها به‌طور عمده دارای هسته



شکل ۱۱ الف) دولومادستون ماسه‌ای با ذرات پراکنده کوارتز ب) رخساره دولوگرینستون ماسه‌ای.

۱۳). براساس نقشه نشانگر همسانی و مطالعات انجام شده توسط حسین یار در افق A، جهت جریان دیرینه سیستم رودخانه‌ای میدان خانگیران در امتداد جنوب غرب شمال شرق بوده است که در پایین دست مسیر حرکت رودخانه به سمت شمال-شمال غرب تغییر کرده است. سیستم رودخانه‌ای از نوع بریده بریده با کانال‌های مختلف و پیچیدگی کم در واحدهای A و B در بخش جنوبی میدان خانگیران، در جهت شمال شرق شرق جریان داشته که در بخش شمال میدان به دلیل عملکرد گسل پی سنگی کپه داغ (عشق آباد) به سمت شمال غرب - غرب تغییر جهت داده‌اند [۱۲].

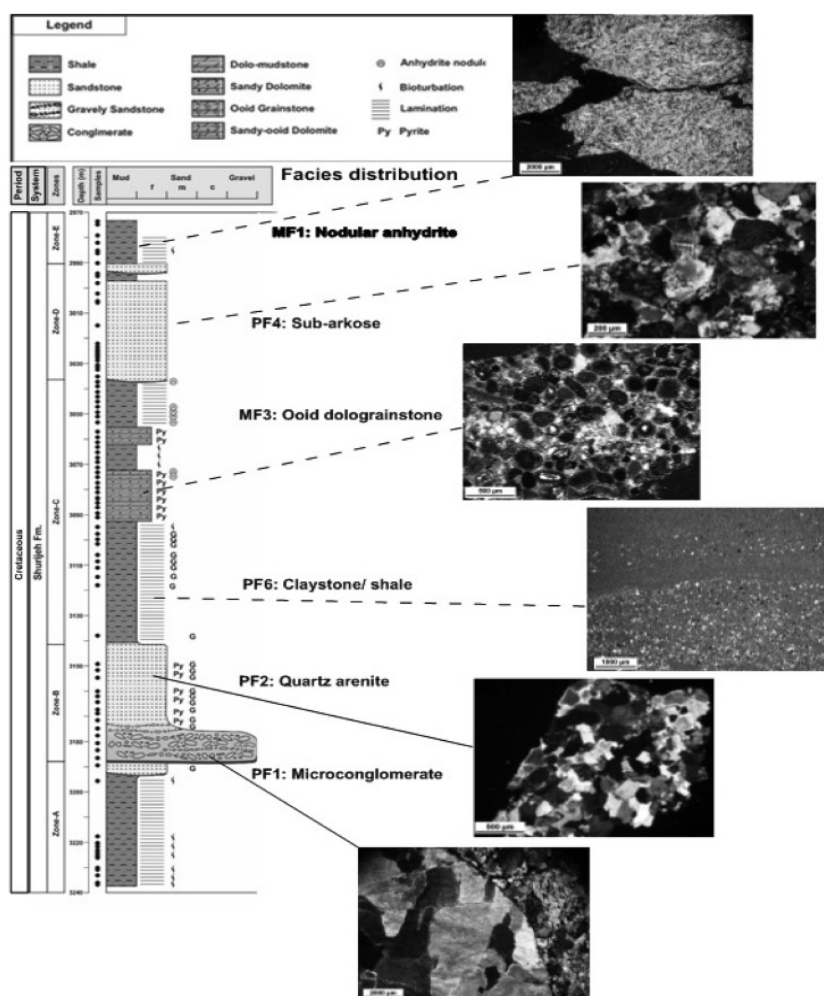
#### فرآیندهای دیاژنزی کنترل کننده کیفیت مخزنی در سازند شوربجه آشفته‌گی زیستی

آشفته‌گی زیستی پدیده‌ای رایج در سنگ‌های رسوبی بوده و به عوامل مختلفی از جمله نرخ رسوب‌گذاری، وجود مواد غذایی و اکسیژن در محیط رسوبی بستگی دارد [۱۳]. فرآیند آشفته‌گی زیستی یا بهم ریختگی رسوبات توسط موجودات زنده در سازند شوربجه به‌طور غالب در رخساره‌های گلی و ریز دانه و گل غالب (کوارتز وک) مشاهده می‌شود (شکل ۱۴). پدیده آشفته‌گی زیستی می‌تواند اثر مثبت یا منفی برروی خصوصیات مخزنی به‌ویژه تراوایی مخزن داشته باشد [۱۴].

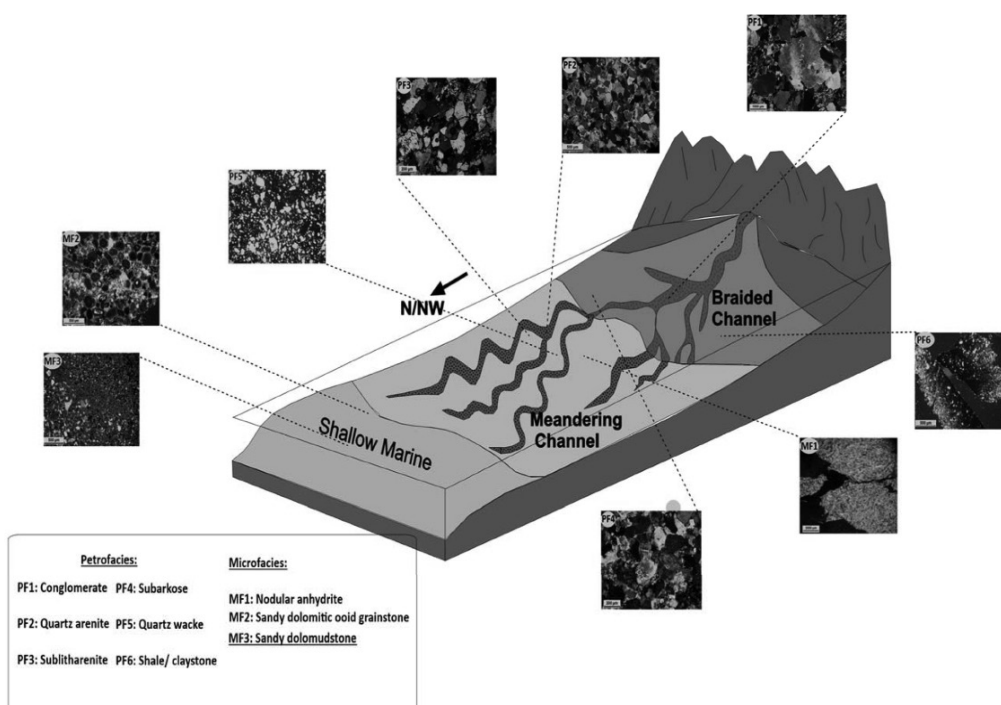
پراکندگی رخساره‌های رسوبی در امتداد توالی سازند شوربجه در چاه کلیدی نشان داده شده است (شکل ۱۲).

#### محیط و مدل رسوبی سازند شوربجه

مطالعات میکروسکوپی رخساره‌های سازند شوربجه در چاه‌های مورد مطالعه نشان می‌دهد که بخش عمده توالی سازند شوربجه در زون‌های B و D چاه‌های مورد مطالعه در میدان خانگیران، به‌ویژه در بخش‌های شرق و جنوب شرق، از پتروفاسیس‌های ماسه‌سنگ و میکروکنگلومرا تا ماسه گراولی ریز شونده به سمت بالا مربوط به رودخانه‌های بریده بریده و گاهی مئاندری تشکیل شده است. به‌نظر می‌رسد گسترش این پتروفاسیس‌ها در ارتباط با مهاجرت جانبی کانال‌ها می‌باشد. علاوه بر این، میزان کمی از نهشته‌های رسی و سیلتی قرمز رنگ مربوط به بخش دشت سیلابی در این بخش مشاهده می‌گردد. بخش میانی توالی سازند شوربجه (زون C) نیز به‌نظر می‌رسد در بخش پر انرژی کولاب تا سدهای جزر و مدی گسترش پیدا کرده است. در ادامه، بخش‌های A و E به‌طور عمده در محیط دشت سیلابی تا پهنه جزر و مدی نهشته شده‌اند. جایگزینی نودول‌های انیدریت در رخساره‌های رس سنگ و نسبت کم ماسه به شیل بیانگر رسوب‌گذاری آن‌ها در یک محیط رسوبی بسته (دریاچه‌های شاخ گاو و دشت سیلابی) در شرایط آب و هوای گرم و خشک می‌باشد (شکل

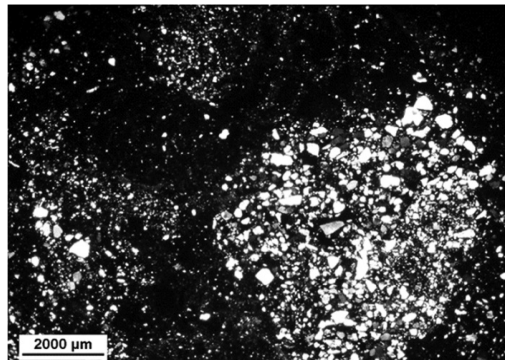


شکل ۱۲ توزیع رخساره‌های رسوبی در امتداد توالی چاه کلیدی سازند شورجه



شکل ۱۳ مدل شماتیکی از محیط رسوب‌گذاری سازند شورجه در سیستم‌های رودخانه‌ای بریده و مئاندری





شکل ۱۴ آشفته‌گی زیستی در پتروفاسیس کوارتز وک

### سیمانی‌شدن

سیمانی‌شدن یکی از مهم‌ترین فرآیندهای دیاژنزی است و در زمانی که سیال‌های منفذی از فاز سیمان فوق‌اشباع هستند تشکیل می‌شود. ترکیب و مورفولوژی سیمان در تفسیر منشاء آن و بازسازی تاریخچه دیاژنزی ارزشمند است [۱۵]. سیمانی‌شدن از فراوان‌ترین پدیده‌های دیاژنزی در سازند شوربچه می‌باشد. فراوان‌ترین سیمان‌های موجود شامل سیمان‌های سیلیسی، کربناته، هماتیته و به‌مقدار کمتر انیدریتی می‌باشند. در مقاطع نازک مورد مطالعه از سازند شوربچه، سیمان‌های سیلیسی، کلسیتی، دولومیتی، هماتیته و انیدریتی به‌شرح زیر مشاهده شده‌اند.

### سیمان سیلیسی

سیمان‌های سیلیسی در مراحل اولیه تدفین در سازند شوربچه نهشته شده و فضاهای خالی بین ذرات را پر کرده‌اند، هر چند در مقایسه با سیمان‌های کربناته از گسترش و فراوانی کمتری برخوردار هستند. از انواع سیمان‌های سیلیسی قابل مشاهده در سازند شوربچه می‌توان به سیمان کوارتزی رورشدی اشاره کرد (شکل ۱۵). سیمان رشد ثانویه کوارتز به‌طور معمول در زون‌های حاوی آب نهشته می‌شود زیرا سیلیس در آب قابل حل بوده اما در نفت قابل حل نمی‌باشد [۱۶]. در نتیجه، عدم حضور یا کم بودن این نوع سیمان در ماسه‌سنگ‌ها علاوه‌بر اثبات مواردی چون عدم وجود منبع سیلیس مورد نیاز می‌تواند نشان‌دهنده

مهاجرت زود هنگام هیدروکربن به داخل سازند بوده که مانع از گسترش سیمان‌های سیلیسی شده‌اند [۱۸ و ۱۷].

### سیمان کلسیتی

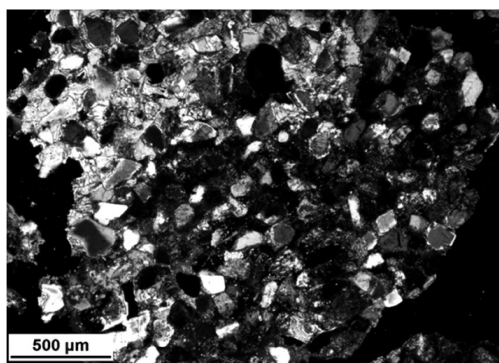
سیمان کلسیتی در سازند شوربچه طی دیاژنز اولیه و دفنی و به‌صورت بلورهای موزاییکی و پوکلیوتوپیک تشکیل شده است (شکل ۱۶). ماسه‌سنگ‌های سازند شوربچه قبل از دفن عمیق و اثر تراکم رسوبات فوقانی، تحت تأثیر سیمانی‌شدن کلسیتی قرار گرفته‌اند و گاهی باعث تشکیل ماسه‌سنگ‌های دارای سطوح تماسی بسیار کم بین دانه‌ها شده‌اند. [۱۹].

### سیمان اکسید آهن (هماتیتی)

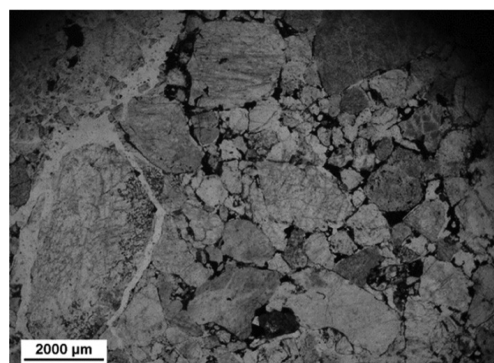
ماسه‌سنگ‌های سازند شوربچه در مقاطع میکروسکوپی به رنگ قرمز بوده که این رنگ قرمز به‌دلیل وجود سیمان هماتیته در اطراف ذرات، در مرز بین دانه‌های کوارتز و سیمان رشد اضافی و همچنین به‌صورت پراکنده در زمینه نمونه‌های حاوی ذرات گل می‌باشد (شکل ۱۷). وجود سیمان هماتیته نشان‌دهنده ته‌نشست این رسوبات در اقلیم نیمه‌خشک و شرایط فیزیکوشیمیایی اکسیدی است [۲۱ و ۲۰].

### سیمان انیدریتی

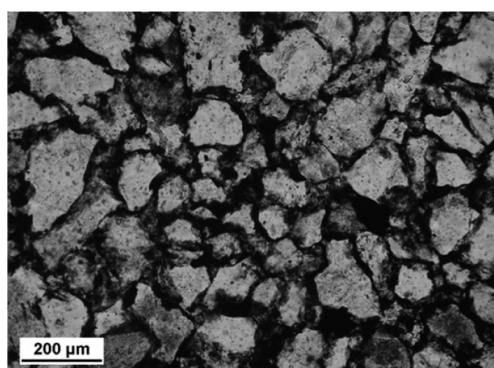
سیمان‌های انیدریتی و همچنین سایر سولفات‌ها به‌عنوان سیمان‌های دیاژنتیک در ماسه‌سنگ‌ها دیده می‌شوند که گاه اثر بسیار زیادی بر روی کیفیت مخزنی سازندها ایفا می‌کنند [۲۲].



شکل ۱۶ سیمان کلسیتی پوکیلو توپیک



شکل ۱۵ سیمان دور دانه ای در پترو فاسیس کنگلومرا



شکل ۱۷ سیمان هماتی در پترو فاسیس ساب آرکوز

نمونه‌هایی با درصد انیدریت پایین‌تر دارای بافت پوکیلو توپیک هستند و توزیع پراکنده انیدریت، تخلخل و تراوایی بالاتری را نشان می‌دهد و نمونه‌هایی با درصد انیدریت بالاتر، دارای بافت نودولار هستند و توزیع یکنواخت انیدریت را نشان می‌دهند [۲۳]. در سازند شورجه، سیمان‌های انیدریتی به صورت پرکننده فضاهای خالی (شکل ۱۸-الف) و در برخی افق‌ها به ویژه در رخساره‌های رس سنگی به صورت نودول‌های انیدریتی نیز مشاهده می‌شوند (شکل ۱۸-ب). میزان فراوانی این سیمان به ویژه در رخساره‌های رس سنگ بیشتر می‌باشد. مطالعات پتروگرافی نشان می‌دهد که سیمان‌های انیدریتی از انواع اولیه بوده و قبل از اولین مرحله از سیمان‌های کربناته نهشته شده‌اند.

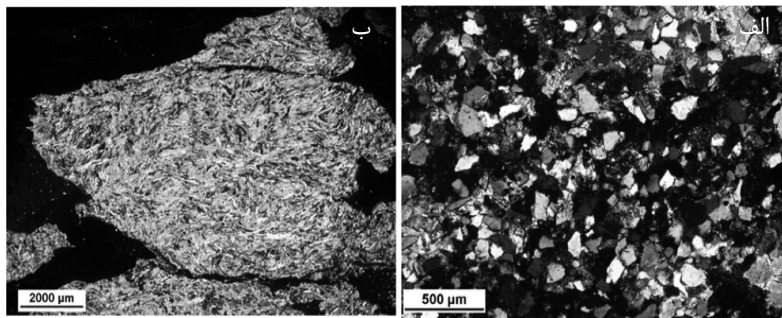
**سیمان دولومیتی و دولومیتی شدن**

یکی از مهم‌ترین و متداول‌ترین نوع جابه‌جایی در سنگ‌های آهکی، جایگزینی کربنات منیزیم و کربنات کلسیم و تشکیل دولومیت است [۲۴]. فرآیند دولومیتی شدن در نمونه‌های مطالعه شده سازند شورجه، در دو مرحله دیاژنزی صورت گرفته و در نتیجه دو نوع دولومیت از نظر اندازه بلوری تشکیل شده است. نوع اول این دولومیت‌ها بسیار ریز بلور بوده که پس از ته نشست و قبل از سیمانی شدن رسوب در طی دیاژنز اولیه تشکیل شده‌اند [۲۵]. در بعضی نمونه‌ها، بلورهای دولومیت در اندازه اسپار و میکرو اسپار به طور کامل زمینه ماسه سنگ‌ها را تشکیل می‌دهند، به طوری که تماس بین دانه‌ها در آن‌ها بسیار کم شده و در برخی موارد به دولوستون ماسه‌ای تبدیل شده‌اند (شکل ۱۹-الف). نوع دوم از دولومیت‌ها به صورت بلورهای درشت شکل دار تا نیمه شکل دار تشکیل شده است (شکل ۱۹-ب). این بلورهای دولومیت به طور معمول به صورت جانشینی کلسیت و یا کوارتز رشد اضافی بوده که این نشان دهنده تاخیری بودن این نوع دولومیت‌ها در توالی پاراژنتیکی و تشکیل آن‌ها در طی دیاژنز دفنی است.

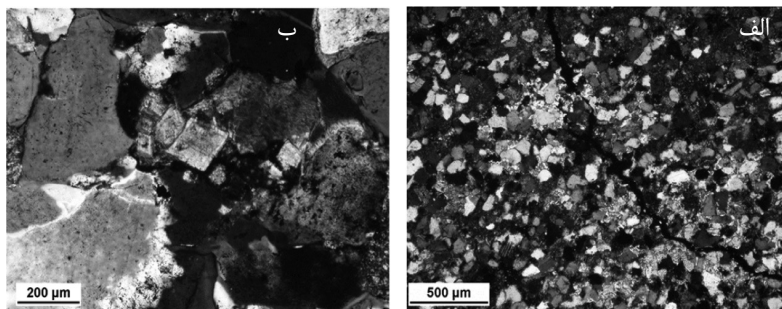
نمونه‌هایی با درصد انیدریت پایین‌تر دارای بافت پوکیلو توپیک هستند و توزیع پراکنده انیدریت، تخلخل و تراوایی بالاتری را نشان می‌دهد و نمونه‌هایی با درصد انیدریت بالاتر، دارای بافت نودولار هستند و توزیع یکنواخت انیدریت را نشان می‌دهند [۲۳]. در سازند شورجه، سیمان‌های انیدریتی به صورت پرکننده فضاهای خالی (شکل ۱۸-الف) و در برخی افق‌ها به ویژه در رخساره‌های رس سنگی به صورت نودول‌های انیدریتی نیز مشاهده می‌شوند (شکل ۱۸-ب). میزان فراوانی این سیمان به ویژه در رخساره‌های رس سنگ بیشتر می‌باشد. مطالعات پتروگرافی نشان می‌دهد که سیمان‌های انیدریتی از انواع اولیه بوده و قبل از اولین مرحله از سیمان‌های کربناته نهشته شده‌اند.

**سیمان دولومیتی و دولومیتی شدن**

یکی از مهم‌ترین و متداول‌ترین نوع جابه‌جایی در سنگ‌های آهکی، جایگزینی کربنات منیزیم و کربنات کلسیم و تشکیل دولومیت است [۲۴]. فرآیند



شکل ۱۸ الف) سیمان انیدریتی پرکننده فضاهای خالی، ب) نودول انیدریتی در پتروفاسیس رس سنگ



شکل ۱۹ الف) دولومیتی‌شدن و تشکیل بلورهای ریز دولومیت، ب) بلورهای خودشکل دولومیتی پرکننده حفرات در رخساره ساب آرکوز

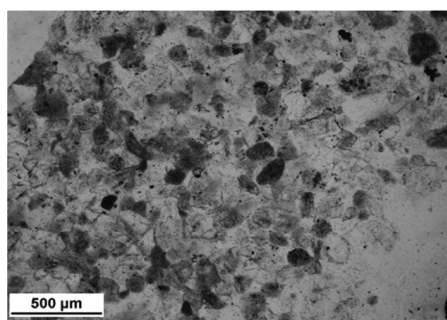
### تراکم

تراکم به‌طور معمول از مراحل اولیه دیاژنز آغاز شده و در مرحله دیاژنز میانی به حداکثر میزان خود می‌رسد. این فرآیند به‌طور معمول ناشی از افزایش بار طبقات بالایی در طی دفن عمیق اتفاق می‌افتد اما گاهی اوقات می‌تواند ناشی از نیروهای تکتونیکی مؤثر در منطقه نیز باشد. این فرآیند در سازند شوربجه به دو صورت مکانیکی و شیمیایی قابل مشاهده است. فشردگی مکانیکی در مراحل اولیه و انتهایی دیاژنز صورت گرفته و به شکل‌های مختلفی (شکل ۲۱-الف) از جمله تغییر شکل ذرات شکل‌پذیر (مانند قطعات خرده سنگی و فلدسپات‌ها)، خمیدگی یا شکستگی برخی دانه‌ها، خاموشی موجی دانه‌های کوارتز و انواع تماس بین دانه‌ای قابل مشاهده است [۲]. تراکم شیمیایی نیز به‌میزان کم و به‌صورت انحلال فشاری و استیلولیتی شدن، درزه‌های انحلالی و سطح تماس مضرسی دانه‌ها دیده می‌شود (شکل ۲۱-ب).

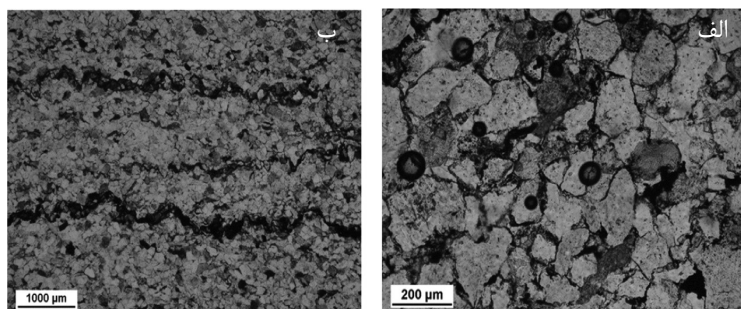
رومبوهدرهای دولومیت در برخی موارد، فضاهای خالی موجود را به‌طور کامل پرکرده‌اند [۲].  
کانی‌زایی پیریت (پیریتی‌شدن)

پیریت یکی از محصولات دیاژنزی اولیه و خاص محیط‌های احیایی است که تشکیل آن، ناشی از عبور اکسید آهن از محیط سولفیدی و واکنش سولفید هیدروژن تولید شده توسط باکتری‌های احیاکننده است [۲۴]. کانی پیریت در سازند شوربجه، به‌صورت بلورهای ریز و پراکنده قابل مشاهده است (شکل ۲۰). به‌طور کلی، تشکیل پیریت‌ها هم در مرحله دیاژنز آغازین و هم در طی دیاژنز دفنی اتفاق می‌افتد. پیریت‌های اولیه به‌طور معمول به‌صورت بلورهای خوشه‌ای بوده و در طی مراحل اولیه دفن به‌وجود می‌آیند [۲۵]. در مقابل پیریت‌های دفنی دارای بلورهای درشت‌تر بوده و نیمه شکل‌دار هستند. این پیریت‌ها یکی از آخرین سیمان‌هایی بوده که همراه با احیای هماتیت و در حضور هیدروکربن‌ها تشکیل می‌شوند [۲۶].





شکل ۲۰ پیریت خوشه‌ای در رخساره کوارتز آرنایت



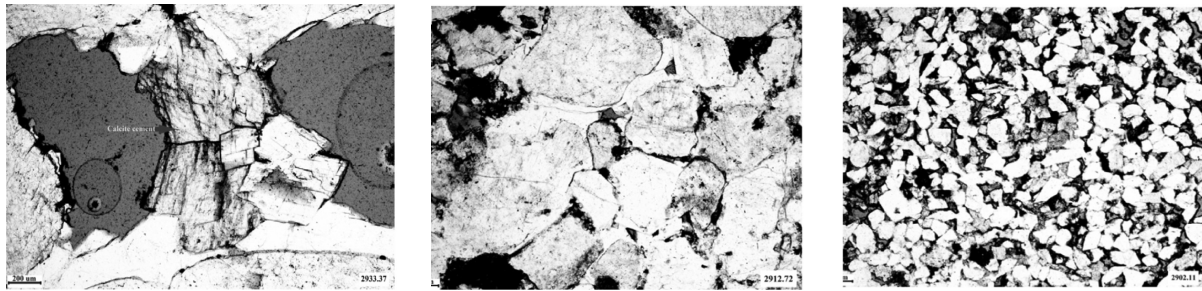
شکل ۲۱ الف) سطح تماس مقعر - محدب بین دانه‌های کوارتز در اثر تراکم مکانیکی در رخساره کوارتز آرنایت ب) استیلولیت و درز انحلالی در اثر تراکم شیمیایی در رخساره کوارتز آرنایت

### تخلخل

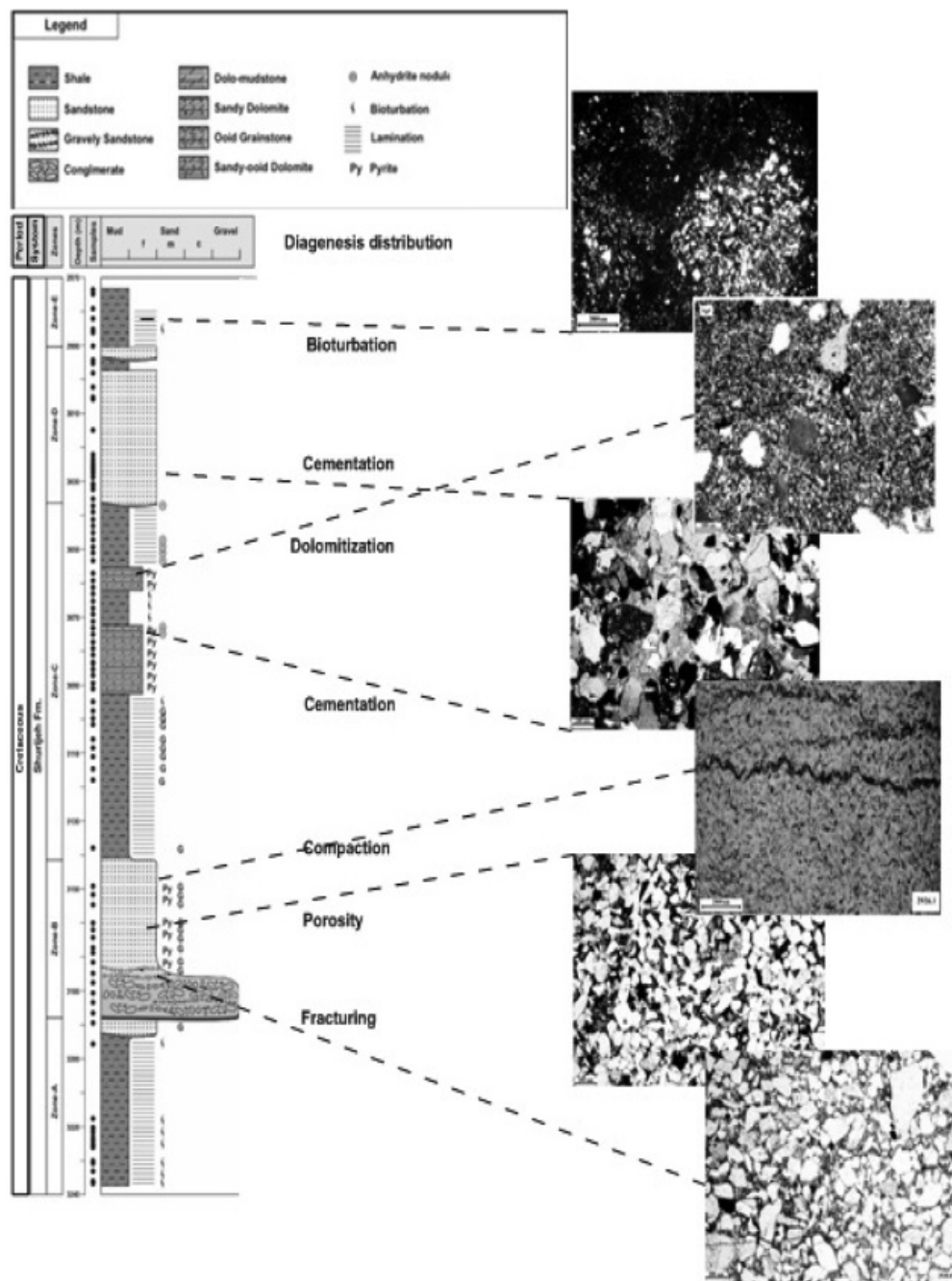
براساس مطالعات پتروگرافی انجام شده تخلخل در ماسه‌سنگ‌های سازند شورریجه از نوع اولیه (بین دانه‌ای) و ثانویه (انحلالی) می‌باشد (شکل ۲۲-الف). این تخلخل‌ها بیشتر در رخساره‌های دانه درشت شامل ماسه‌سنگ‌های درشت دانه، میکروکنگلومرا و ماسه‌های گراولی بخش پایینی این سازند رواج دارند (شکل ۲۲-ب). سایر واحدهای ماسه‌سنگی این سازند به‌علت حضور گسترده انواع سیمان‌های کلسیتی، سیلیسی و انیدریتی و همچنین وجود رس، دارای کیفیت ضعیف‌تری هستند. جدایش چینه‌ای و ایزوله شدن هیدرولوژیکی این واحدهای ماسه‌ای توسط لایه‌های نازک گل‌سنگ و شیل نفوذناپذیر باعث جلوگیری از ایجاد تخلخل ثانویه حاصل از انحلال سیمان‌های کربناته توسط سیالات اسیدی ناشی از تراکم و فشارش ستون رسوبات می‌شود که این امر نیز باعث ضعیف‌تر شدن کیفیت مخزنی این بخش‌ها در سازند شورریجه می‌شود. تخلخل

ثانویه در بخش‌های مطالعه شده این سازند شامل خلل و فرج ناشی از انحلال سیمان‌های کربناته می‌باشد. اندازه بزرگ این خلل و فرج و حضور بقایای سیمان‌های کربناته در آن‌ها بیانگر این مطلب است که این فضاهای خالی در نتیجه انحلال سیمان‌های کربناته تولید شده‌اند (شکل ۲۲-ج). انحلال انیدریت نیز می‌تواند تا حد کمی در تولید تخلخل ثانویه مؤثر باشد اما شواهد خاصی مبنی بر این مطلب در مقاطع مورد مطالعه به‌ندرت مشاهده شده است. انحلال کلسیت در زمانی که این ماسه‌سنگ‌ها در معرض آب‌هایی با pH پایین در رژیم فشارشی قرار گرفته‌اند، صورت گرفته است [۲۷]. لازم به ذکر است که تخلخل ناشی از شکستگی نیز به‌ندرت در مقاطع مورد مطالعه مشاهده شده است (شکل ۲۲-د). پراکندگی فرآیندهای مختلف دیاژنزی در امتداد توالی چاه کلیدی سازند شورریجه نشان داده شده است (شکل ۲۳).





شکل ۲۲ الف) تخلخل‌های انحلالی و بین دانه‌ای، ب) تخلخل بین دانه‌ای حفظ شده در بین سیمان‌های کوارتزی رشد اضافی، ج) بقایای سیمان کلسیتی در خلل و فرج نمونه



شکل ۲۳ توزیع فرآیندهای دیاژنزی در امتداد توالی چاه کلیدی سازند شوربچه

## توالی پاراژنتیکی در سازند شوريجه

مطالعات پتروگرافی نشان می‌دهد چاه‌های مورد مطالعه سازند شوريجه تحت تاثیر فرآیندهای دیاژنتیک در سه مرحله پیشین، تدفینی و بالا آمدگی قرار گرفته‌اند (جدول ۱). در مرحله پیشین دیاژنز، چرخش آب‌های متوریک در داخل رسوبات ماسه‌سنگی باعث دگرسانی فلدسپات‌ها و میکاها شده است. با توجه به ترکیب اکسیدی آب‌های درون حفره‌ای در این مرحله، پوشش‌های اکسید آهن (هماتیت) بر روی دانه‌های آواری مانند کوارتز صورت گرفته است. همچنین، بهم‌ریختگی رسوبات توسط جانداران در این مرحله با توجه به وجود اکسیژن و شرایط مناسب اتفاق افتاده است. در بخش‌هایی که میزان تراکم فیزیکی رسوبات ماسه‌سنگی کمتر بوده است، تشکیل سیمان‌های کلسیتی و دولومیتی صورت گرفته و تا مرحله تدفینی دیاژنز نیز ادامه داشته است. اما در بخش‌هایی که میزان رسوبات

دانه‌ریز زیاد بوده است، تراکم فیزیکی بیشتر بوده و مانع تشکیل سیمان‌های کلسیتی شده است، در حالی که ته‌نشست انیدریت به‌صورت نودول در این بخش‌ها صورت گرفته و گاهی به‌صورت سیمان به داخل لایه‌های پایین‌تر نفوذ کرده است. در مرحله تدفینی، فشردگی مکانیکی ادامه داشته و با افزایش عمق تدفین، انحلال فشاری و استیلولیتی شدن در مرز تماس بین ذرات ماسه‌سنگی رخ داده است. سیلیس حاصل از فرایند انحلال فشاری به‌همراه سایر سیلیس موجود در فضاهای خالی به‌صورت سیمان رورشدی هم‌محور در اطراف ذرات کوارتز ته‌نشست پیدا کرده است. همچنین، تشکیل پیریت در حضور احیای اکسید آهن در این مرحله صورت گرفته است. در نهایت، بالاآمدگی تکتونیکی باعث رخنمون یافتن بخش‌هایی از توالی سازند شوريجه شده که دوباره تحت تأثیر اکسیداسیون و تشکیل سیمان اکسید آهن و تراکم فیزیکی قرار گرفته‌اند.

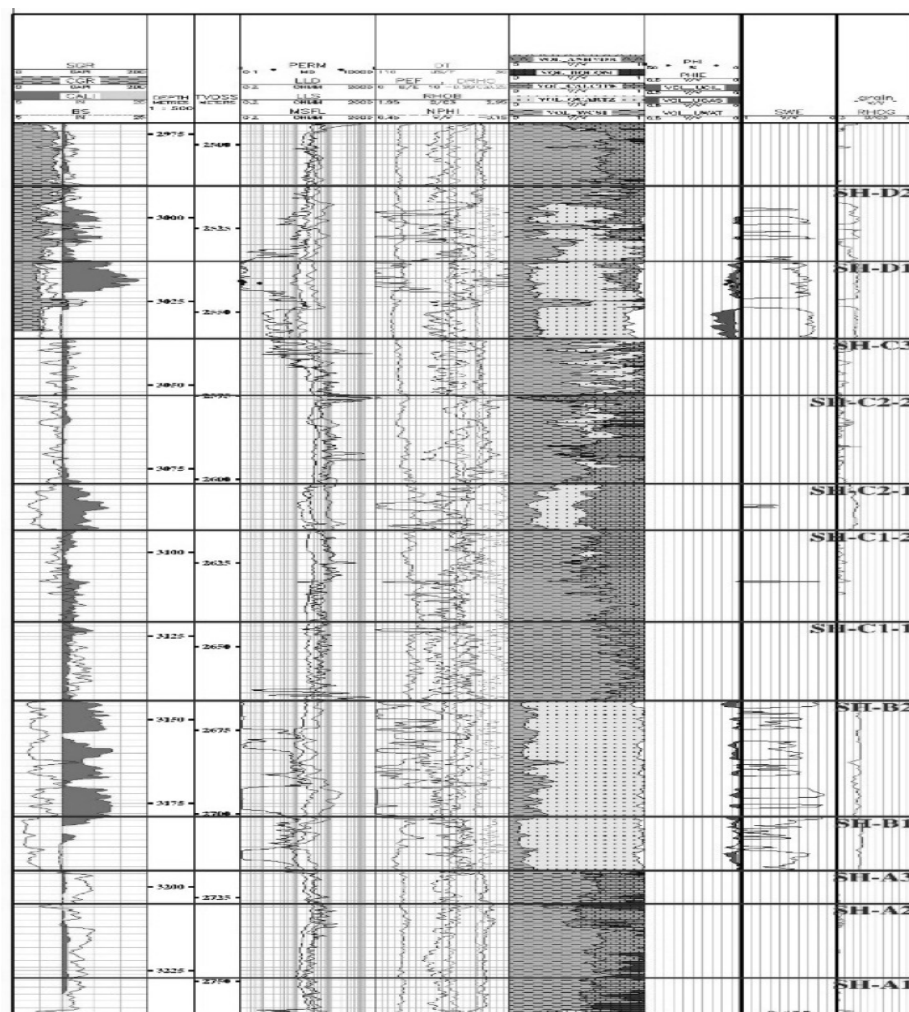
جدول ۱ توالی پاراژنتیکی سازند شوريجه در چاه‌های مورد مطالعه

مراحل دیاژنز	دیاژنز اولیه		
	دیاژنز میانی	دیاژنز انتهایی	فرآیندهای دیاژنز
آشفته‌گی زیستی	-----		
سیمان هماتیتی		-----	
دولومیتی شدن اولیه	-----		
سیمان کلسیتی		-----	
سیمان سیلیسی	-----		
سیمان دولومیتی		-----	
سیمان انیدریتی	-----		
تراکم فیزیکی		-----	
تراکم شیمیایی	-----		
پیریتی شدن	-----		
فرآیند دیاژنزی منفی فرآیند دیاژنزی مثبت فرآیند دیاژنزی خنثی	----- ----- -----		

### مقایسه مطالعات پتروگرافی و پتروفیزیکی

نتایج حاصل از ارزیابی پتروفیزیکی برای سازند شوربچه در چاه‌های مورد مطالعه نشان می‌دهد از نظر ترکیب کانی‌شناسی، سازند شوربچه به‌طور عمده از کانی‌های کوارتز، کلسیت، دولومیت و انیدریت تشکیل شده است. شرایط مخزنی زون‌های موجود را می‌توان در ارتباط با ویژگی‌هایی مانند ترکیب کانی‌شناسی، اندازه و جورشدگی ذرات، نوع سیمان بین آن‌ها و غیره مورد بررسی قرار داد. براساس محاسبات و تغییرات پارامترهای پتروفیزیکی و تلفیق این نتایج با مطالعات پتروگرافی، سازند شوربچه در چاه کلیدی میدان مورد مطالعه به ۱۱ زون تقسیم شده است (شکل ۲۴). همان‌طور که

در شکل ۲۴ مشاهده می‌شود زون‌های B و D با ظهور و غلبه رخساره‌های ماسه‌سنگی و با پوشش رخساره‌های شیلی و همچنین به‌علت تخلخل بیشتر در رخساره‌های دانه درشت، با خصوصیات مخزنی خوب مشخص است که قابل انطباق با نتایج حاصل از مطالعات مقاطع نازک می‌باشد. طبق مطالعات مقاطع نازک زون B و D سازند شوربچه از رخساره‌های ماسه‌سنگی تشکیل شده‌اند که تحت تأثیر فرآیندهای دیاژنتیکی چون تخلخل، شکستگی ناشی از انحلال، استیلولیت و دولومیتی‌شدن قرار گرفته‌اند (شکل‌های ۱۲ و ۲۳). افق D از نظر مخزنی بهتر از زون B است که می‌توان آن را در ارتباط با دولومیتی‌شدن، اندازه ذرات ماسه و جورشدگی آن‌ها در نظر گرفت.



شکل ۲۴ نمایی گرافیکی از نتایج محاسبات احتمالی انجام شده در چاه کلیدی میدان خانگیران

## بررسی فرآیندهای دیاژنز با نمودارهای تصویرگر

نمودارهای تصویرگر سازند اطلاعات مهمی در مورد شکستگی‌ها ارائه می‌دهند. به‌علاوه با تفسیر آن‌ها می‌توان سایر پدیده‌های زمین‌شناسی مانند لایه‌بندی، استیلولیت، گسل‌ها و گرهک‌های انیدریت را شناسایی نمود. تخلخل، تراوایی و ناهمگونی مخزن<sup>۱</sup> از سنجه‌های مهم دیگر هستند که می‌توان از تحلیل نمودارهای تصویری محاسبه نمود. به‌طور کلی شکستگی‌ها نقش مهمی در تولید از مخازن شکاف‌دار ایفا می‌کنند [۲۹]. اگر هدف از مطالعه سنگ‌ها و توالی‌های رسوبی رسیدن به محیط و فرآیندهای رسوبی باشد، در ابتدا باید رخساره‌های مختلف موجود در آن محیط را شناخت. به‌دلیل مشکلات ناشی از تهیه مغزه، نمودارهای تصویرگر جانشین مناسبی برای شناخت و مطالعه بافت‌ها هستند. نمودارهای تصویرگر در شناخت ساخت‌ها و عوارض رسوبی کوچک مقیاس کمک زیادی می‌کنند. در این مطالعه با استفاده از نمودار تصویرگر توسط نرم‌افزار ژئولاگ نسخه ۸ به تفسیر فرآیندهای دیاژنز در چاه کلیدی چاه‌های مورد مطالعه برای تطابق با نتایج حاصل از مطالعه مقاطع نازک پرداخته شده است. در تفسیر نمودارهای تصویری، ویژگی‌های ساختاری مانند لایه‌بندی<sup>۲</sup>، استیلولیت، رگچه‌های انحلالی<sup>۳</sup>،

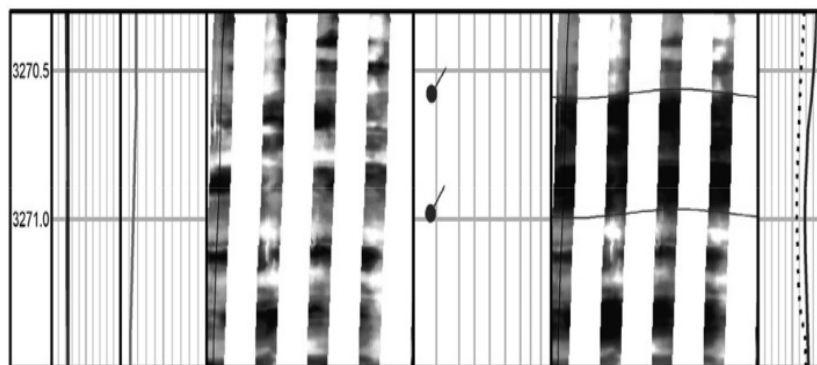
لامیناسیون، شکستگی‌ها و ریزش‌های متقارن<sup>۴</sup> در طی حفاری شناسایی شده‌اند. این بررسی نشان می‌دهد که در اکثر موارد انطباق خوبی بین بررسی فرآیندهای دیاژنز براساس مطالعات مقاطع نازک و مطالعه فرآیندهای دیاژنز براساس نمودارهای تصویرگر وجود دارد.

## لایه‌بندی

شیب ساختاری با استفاده از مرزهای لایه‌بندی شناسایی شده از روی لاگ تصویری تعیین شد. این سطوح به‌طور معمول نشان‌دهنده تغییرات ناگهانی لیتولوژی می‌باشند، که توسط پدیده‌های دیاژنزی و تکنیکی تحت تأثیر قرار نگرفته‌اند [۳۰]. در نمودار تصویرگر لایه‌ها با رنگی تیره در زمینه روشن‌تر مشاهده می‌شوند. این خطوط تیره اغلب به‌صورت موجی تا مستقیم در نمودار مشاهده می‌شوند. نمونه‌ای از لایه‌بندی چاه کلیدی مورد مطالعه بر روی نمودار تصویرگر FMS نشان داده شده است (شکل ۲۵).

## لامیناسیون

لامیناسیون نشان‌دهنده تغییرات جزئی در رسوبات به‌هنگام رسوب‌گذاری می‌باشد. به‌طور معمول تغییرات دوره‌ای در تامین رسوبات باعث ایجاد لامینه‌ها می‌شود.



شکل ۲۵ نمونه ای از لایه‌بندی چاه مورد مطالعه در لاگ تصویری FMS

1. Heterogeneity
2. Bedding
3. Solution Seam
4. Breakout

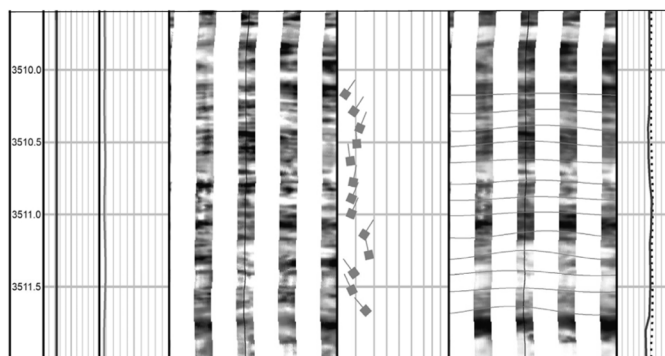


مطالعه بیشتر استیلولیت‌ها موازی و یا نیمه موازی با لایه‌بندی‌ها هستند [۹]. استیلولیت‌ها معمولاً به‌صورت دسته‌ای دیده می‌شوند و در مقطع عرضی به‌صورت مضرسی (زیگ زاگ) دیده می‌شوند. استیلولیت‌ها به‌طور معمول با مواد نامحلول مانند کانی‌های رسی، اکسید آهن و مواد ارگانیک پر می‌شوند. عمود بر جهت استیلولیت‌ها معمولاً سدهای تراوایی ایجاد می‌شود، درحالی‌که در امتداد آن‌ها ممکن است انتقال جریان در سنگ تسهیل شود. همچنین در زون‌های استیلولیتی، تخلخل به‌میزان زیادی (در اثر انحلال فشارشی) کاهش می‌یابد [۳۰]. تراکم استیلولیت‌ها در چاه مورد مطالعه بالا می‌باشد. استیلولیت‌ها در نمودار تصویرگر اغلب به‌رنگ تیره دیده می‌شوند. تفاوت استیلولیت‌ها با لایه‌های شیلی نازک، بی‌نظمی استیلولیت‌هاست. نمونه‌ای از استیلولیت‌های شناسایی شده در چاه کلیدی مورد مطالعه بر روی لاگ تصویری FMS نشان داده شده است (شکل ۲۷).

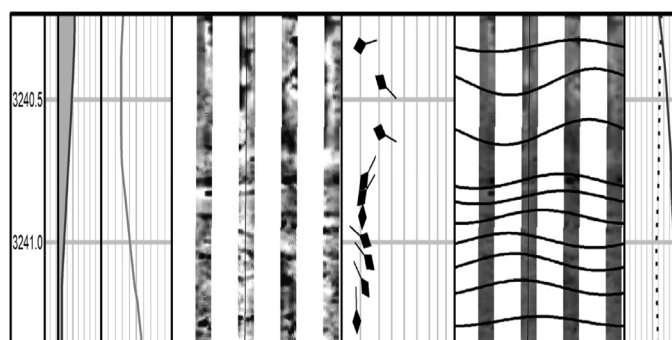
این تغییرات می‌تواند در اندازه دانه‌ها، درصد رس، محتوای میکروفسیل و میزان ماده آلی ایجاد شود. به‌دلیل قدرت تفکیک بالا در نمودارهای تصویرگر، لامینه نیز به‌صورت بسیار نازک که به‌طور کامل پیوسته نیستند در نمودار مشاهده می‌شوند و بیانگر محیطی با انرژی پایین می‌باشند [۳۰]. نمونه‌ای از لامیناسیون شناسایی شده در چاه کلیدی مورد مطالعه بر روی لاگ تصویری FMS نشان داده شده است (شکل ۲۶).

### استیلولیت

استیلولیت نشان‌دهنده انحلال شیمیایی و تراکم است. عمده‌ترین مواد پرکننده استیلولیت‌ها کانی‌های رسی هستند و به همین دلیل در نمودارهای تصویرگر به‌جهت رسانایی بالای الکتریکی تیره‌تر دیده می‌شوند، ولی گاهی امکان دارد مواد هیدروکربوری در صفحه استیلولیت‌ها متجمع شوند که در این صورت روشن‌تر به‌نظر می‌رسند. استیلولیت‌ها در کربنات‌ها به‌وفور دیده می‌شوند. در چاه‌های مورد



شکل ۲۶ تعدادی از لامینه‌های برداشت شده چاه مورد مطالعه از لاگ تصویری FMS



شکل ۲۷ تعدادی از استیلولیت‌های شناسایی شده در چاه مورد مطالعه از لاگ تصویری FMS

## رگچه انحلالی

رگچه‌های انحلالی نیز مانند استیلولیت‌ها محصول انحلال فشارشی می‌باشند. رگچه‌های انحلالی دارای ظاهر صاف‌تری نسبت به استیلولیت‌ها می‌باشند و با توجه به این تفاوت، می‌توان آن‌ها را نسبت به استیلولیت‌ها متمایز کرد [۳۰]. تعدادی از رگچه‌های انحلالی چاه کلیدی مورد مطالعه در نمودار تصویرگر FMS نشان داده شده است (شکل ۲۸).

## شکستگی‌های باز

به‌طور کلی تراوایی سازند در موازات شکستگی‌های باز افزایش می‌یابد. تراوایی حاصل از شکستگی‌های باز تابعی از بازشدگی آن‌ها، میزان تنش وارده عمود بر امتداد شکستگی و زبری سطوح شکستگی است. برخی از پارامترهای زمین‌شناسی برروی تراکم شکستگی‌های طبیعی مؤثر می‌باشند. این پارامترها عبارتند از: لیتولوژی، اندازه دانه، تخلخل، ضخامت لایه‌بندی، موقعیت ساختاری [۳۰]. شکستگی‌های باز به‌صورت یک موج سینوسی کامل یا ناپیوسته و تیره‌رنگ در نمودار تصویرگر دیده می‌شود. نمونه‌ای از شکستگی‌های باز شناسایی شده در چاه کلیدی

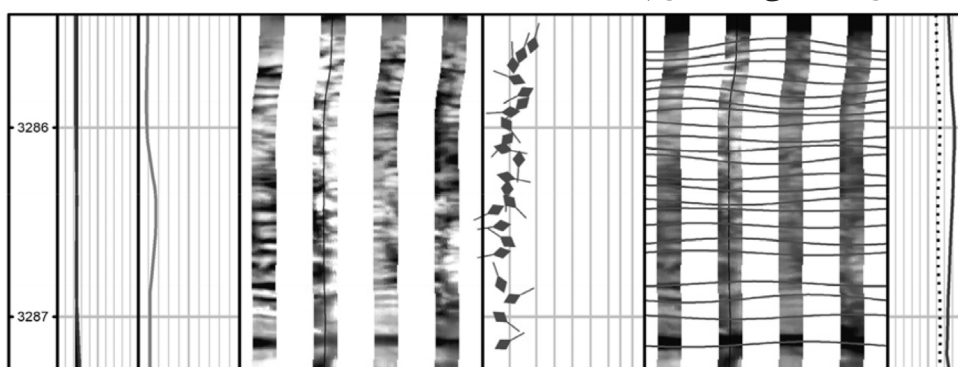
مورد مطالعه برروی نمودار تصویرگر FMS نشان داده شده است (شکل ۲۹).

## شکستگی القایی

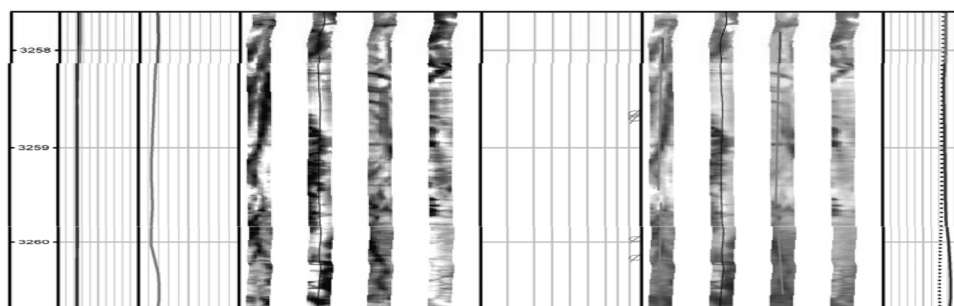
وقتی که وزن گل زیاد باشد مقدار تنشی که گل حفاری در اعماق به دیواره چاه وارد می‌کند بیشتر از تنش بیشینه در آن اعماق است. بنابراین در دو قسمت متقابل دیواره چاه شکستگی کششی به‌وجود می‌آید که شکستگی القایی در اثر حفاری نامیده می‌شود [۳۱]. شکستگی‌های القایی در چاه‌های قائم به‌صورت متقارن در دو طرف چاه و به موازات محور چاه دیده می‌شوند. نمونه‌ای از شکستگی‌های باز شناسایی شده در چاه کلیدی مورد مطالعه برروی نمودار تصویرگر FMS نشان داده شده است (شکل ۳۰).

## شکستگی‌های طبیعی توسعه یافته

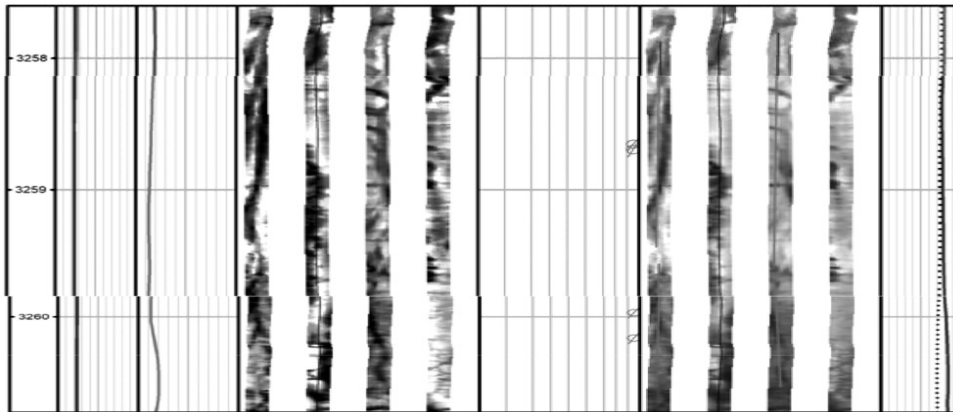
این شکستگی‌ها به‌صورت طبیعی در مخزن وجود دارد و فرآیند حفاری باعث بازتر شدن آن‌ها شده و امکان تشخیص آن‌ها برروی لاگ تصویری فراهم می‌شود [۳۰].



شکل ۲۸ تعدادی از رگچه‌های انحلالی چاه مورد مطالعه برروی لاگ تصویرگر FMS



شکل ۲۹ تعدادی از شکستگی‌های باز شناسایی شده چاه مورد مطالعه برروی لاگ تصویری FMS



شکل ۳۰ تعدادی از شکستگی‌های القایی شناسایی شده چاه مورد مطالعه بر روی لاگ تصویری FMS

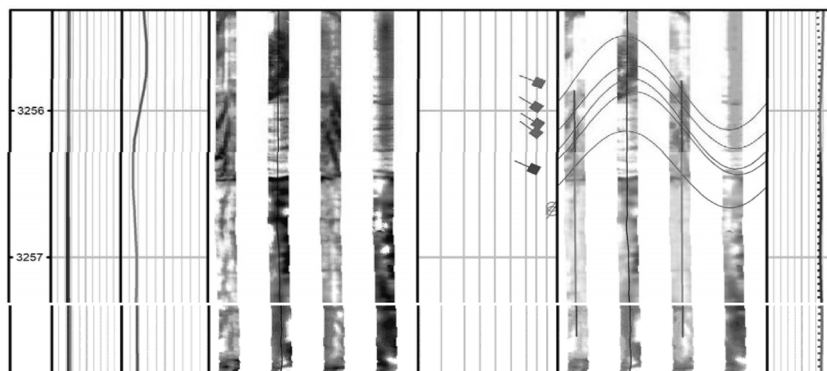
ساختار لایه ای گفته می‌شود که حاصل از نهشته شدن لایه‌های مورب به‌صورت سطح شیب‌دار باشد. چینه‌بندی متقاطع یک نوع لایه‌بندی با مقیاس کوچک‌تر است که به‌طور غالب ضخامت آن‌ها کم است و نسبت به طبقه‌بندی اصلی به حالت متقاطع قرار گرفته‌اند. چینه‌بندی متقاطع نتیجه محیط ویژه‌ای از رسوب‌گذاری است و نه تغییر شکل هندسی سنگ بر اثر تنش [۳۰]. در لاگ تصویرگر، چینه‌بندی‌های متقاطع، با تغییرات ناگهانی (و به‌صورت عمود بر هم) در شیب لایه‌ها شناسایی می‌شوند. جهت شیب چینه‌بندی‌های متقاطع به‌طور غالب به سمت شمال می باشد. نمونه ای از چینه‌بندی متقاطع چاه کلیدی مورد مطالعه بر روی نمودار FMS نشان داده شده است (شکل ۳۳).

تعدادی از شکستگی‌های طبیعی توسعه یافته در اثر حفاری که با موج سینوسی بر روی نمودار FMS مشخص شده، نشان داده شده است (شکل ۳۱) ریزش متقارن

ریزش‌های متقارن<sup>۱</sup> هنگامی ایجاد می‌شوند که تنش‌های اطراف دیواره چاه از مقاومت فشارشی سنگ فزونی یابد [۳۲]. ریزش‌های متقارن در راستای عمود بر تنش افقی بیشینه ایجاد می‌شوند. هنگامی که یک چاه حفاری می‌شود دیگر سنگی در آن محل وجود ندارد که تنش را تحمل کند، بنابراین تنش به سنگ‌های اطراف منتقل می‌شود [۳۰]. نمونه‌ای از ریزش متقارن دیواره چاه بر روی نمودار تصویرگر FMS نشان داده شده است (شکل ۳۲).

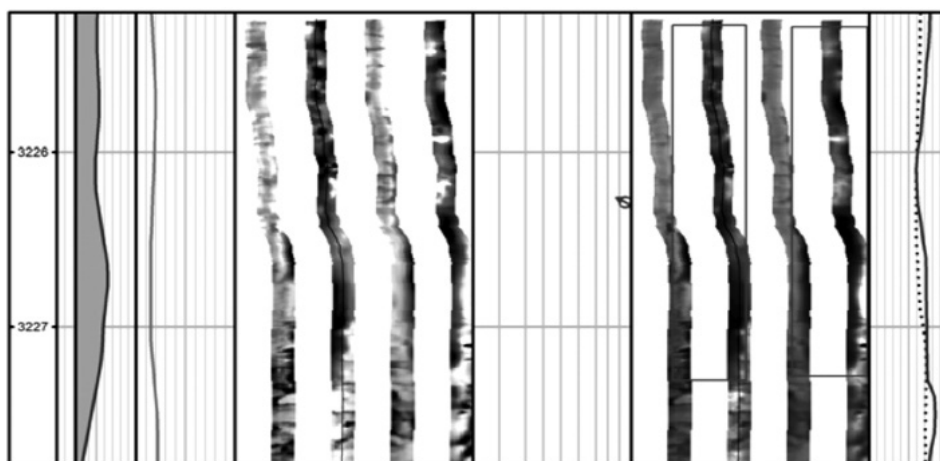
#### چینه‌بندی متقاطع

چینه‌بندی متقاطع با لایه‌بندی چلیپایی به نوعی

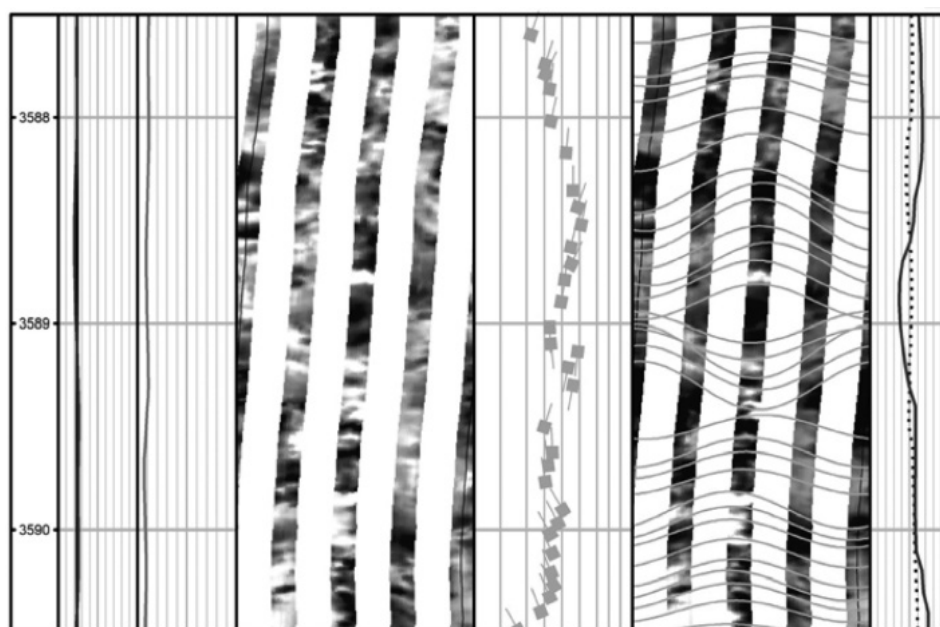


شکل ۳۱ نمونه‌ای از شکستگی‌های طبیعی توسعه یافته در اثر حفاری به‌همراه شکستگی‌های القایی در چاه مورد مطالعه بر روی نمودار FMS





شکل ۳۲ یک جفت از ریزش‌های متقارن دیواره چاه بر روی نمودار FMS



شکل ۳۳ نمونه‌ای از چین‌بندی‌های متقاطع چاه مورد مطالعه بر روی نمودار FMS

### نتیجه‌گیری

است که در پهنه‌های جزر و مدی، رودخانه‌ای، دشت سیلابی و رسوبی مئاندري قرار گرفته‌اند. بخش عمده توالی سازند شوريجه در زون‌های B و D چاه‌های مورد مطالعه میدان خانگیران، به‌ویژه در بخش‌های شرق و جنوب شرقی آن، از پتروفاسیس‌های ماسه‌سنگ و میکروکنگلومرا تا ماسه گراولی تشکیل شده است که بیانگر تشکیل این رخساره‌ها در رودخانه‌های بریده بریده و مئاندري می‌باشد. بخش میانی توالی سازند شوريجه (زون C) نیز به‌نظر می‌رسد در بخش پر انرژی کولاب تا

• مطالعات پتروگرافی سازند شوريجه نشان می‌دهد که شرایط آب و هوایی منطقه در زمان رسوب‌گذاری این ذرات نیمه خشک تا مرطوب بوده است.

• براساس بررسی‌های پتروگرافی بر روی مقاطع نازک سازند شوريجه در چاه‌های مورد مطالعه، ۹ رخساره سنگی اصلی شامل کنگلومرای ماسه‌ای، کوارتز آرنایت، ساب لیتارنایت، ساب آرکوز، کوارتز وک، رس‌سنگ/شیل، انیدریت نودولار، دولومادستون ماسه‌ای و دولوگرینستون ماسه‌ای شناسایی گردیده

انیدریت تشکیل شده است.

- براساس توزیع فرآیندهای دیاژنز و رخساره‌ها در امتداد توالی چاه‌های مورد مطالعه در سازند شوربجه، زون B با ظهور و غلبه رخساره‌های ماسه‌سنگی و وجود میکروکنگلومرا در قاعده این زون و فرآیندهای دیاژنتیکی با تأثیر مثبت مانند تخلخل و شکستگی دارای خصوصیات مخزنی است. همچنین زون D نیز به دلیل وجود رخساره‌های ماسه‌سنگی و دولومیتی‌شدن دارای خصوصیات مخزنی خوب است.
- براساس محاسبات و تغییرات پارامترهای پتروفیزیکی و تلفیق این نتایج با مطالعات پتروگرافی زون B و D با ظهور و غلبه رخساره‌های ماسه‌سنگی با خصوصیات مخزنی خوب مشخص است.
- تراکم پدیده‌های حاصل از انحلال فشاری (رگچه‌های انحلالی و استیلولیت‌ها) در چاه کلیدی مورد مطالعه بسیار زیاد می‌باشد. تراکم زیاد استیلولیت و رگچه‌های انحلالی در مخزن می‌تواند تراوایی عمودی را کاهش دهد.
- در اکثر موارد انطباق خوبی بین مطالعات حاصل از مقاطع نازک، نمودار پتروفیزیکی و نمودارهای تصویرگر وجود دارد.

سدهای جزر و مدی گسترش پیدا کرده است. در ادامه، بخش‌های A و E به‌طور عمده در محیط دشت سیلابی تا پهنه جزر و مدی نهشته شده‌اند.

- بررسی‌های پتروگرافی نشان می‌دهد که فرآیندهای دیاژنتیکی این سنگ‌ها را در سه مرحله دیاژنز آغازین، دفنی و بالآمدگی تحت تأثیر قرار داده است. مهم‌ترین فرآیندهای دیاژنزی تأثیرگذار در سازند شوربجه شامل آشفستگی زیستی، سیمانی‌شدن (سیلیسی، کلسیتی، دولومیتی، همتیتی و انیدریتی)، تراکم و تخلخل می‌باشند. سیمان‌های کلسیتی و دولومیتی در سازند شوربجه، اصلی‌ترین سیمان کربناته بوده و از مهم‌ترین فرآیندهای دیاژنزی کاهش‌دهنده تخلخل در این سازند محسوب می‌شوند.
- براساس مطالعات پتروگرافی انجام شده تخلخل در ماسه سنگ‌های سازند شوربجه از نوع اولیه (بین دانه‌ای) و ثانویه (انحلالی) می‌باشد. تخلخل بیشتر در رخساره‌های دانه درشت سازند رواج دارد.
- نتایج حاصل از ارزیابی پتروفیزیکی برای سازند شوربجه در چاه‌های مورد مطالعه نشان می‌دهد از نظر ترکیب کانی‌شناسی، سازند شوربجه به‌طور عمده از کانی‌های کوارتز، کلسیت، دولومیت و

## مراجع

- [1]. Lyberis N, Manby G (1999) Oblique to orthogonal convergence across the Turan Block in the PostMiocene, AAPG Bulletin, 83, 7: 1135-1160.
- [۲]. کدخدایی ع، تقوی م (۱۳۹۷) گزارش رسوب‌شناسی سازند شوربجه در میدان گازی خانگیران، شرکت نفت مناطق مرکزی ایران، شرکت خدمات مهندسی نفت کیش، ۴۹-۱.
- [3]. Robert A M, Letouzey J, Kavooosi M A, Sherkati S, Müller C, Vergés J, Aghababaei A (2014) Structural evolution of the Kopeh Dagh fold-and-thrust belt (NE Iran) and interactions with the South Caspian Sea Basin and Amu Darya Basin, Marine and Petroleum Geology, 57: 68-87.
- [۴]. تقوی م (۱۳۹۷) گزارش مطالعه به روز رسانی میدان گازی خانگیران، شرکت نفت مناطق مرکزی ایران، شرکت خدمات مهندسی نفت کیش، ۵۲-۱.
- [5]. Afshar- Harab A (1979) The stratigraphy, tectonic and petroleum geology of Kopeh Dagh region, Northern Iran, Ph.D. thesis, Petroleum geology of Iran, Royal School of Mines, Imperial College, London, 316.
- [۶]. نداف - کهنه قوچان ر، نجفی م، موسوی - حرمی ر (۱۳۷۷) مطالعات لیتواستراتیگرافی و پتروگرافی سازند شوربجه در دره رادکان بارو واقع در جنوب شرق قوچان و مقایسه آن با مقاطع چشمه گیلان. دره خور و گردنه مزدوران، رساله دکتری، وزارت علوم، تحقیقات و فن‌آوری، دانشگاه فردوسی مشهد، ایران.

[۷]. طباطبایی پ، لاسمی ی، جهانی د، اصیلان - مهابادی ح (۱۳۹۲) رخساره‌ها و محیط‌های رسوبی سازند شوربجه در برش‌های قرقره و خانگیران، خاور حوضه رسوبی کپه داغ، ماهنامه اکتشاف و تولید نفت و گاز، ۹۲، ۱۰۴: ۷۸-۷۲.

[۸]. مرتضوی - مهریزی م، موسوی - حرمی ر، محبوبی ا، نجفی م، قائمی ف (۱۳۹۲) بررسی رخساره‌های سنگی، تاریخچه رسوب‌گذاری و پس از رسوب‌گذاری و چینه‌نگاری سکانسی سازند شوربجه (کرتاسه تحتانی) در بخش مرکزی و غربی حوضه رسوبی کپه داغ، وزارت علوم، تحقیقات و فناوری، رساله دکتری، دانشگاه فردوسی مشهد، ایران.

[۹]. منصوری هفشجانی م، رحیم‌پور- بناب ح، توکلی و (۱۳۹۳) کاربرد نمودار ریز تصویرگر سازند دالان در شناسایی رخساره‌های رسوبی و پدیده‌های دیاژنزی در یکی از مخازن هیدروکربوری جنوب ایران، نشریه علمی پژوهشی رخساره‌های رسوبی، ۲۰۷: ۲۸۶-۲۶۸.

[10]. Miall AD (2014) The geology of fluvial deposits sedimentary facies basin analysis and petroleum geology, Published by Springer-Verlag, 582.

[11] Tucker M E (2001) Sedimentary petrology, blackwell scientific publications, Oxford, Geological Magazine, 01, 139: 97- 104.

[۱۲]. حسین‌یار غ ر، موسوی حرمی ر، عبدلهی‌فرد ا، محبوبی ا، مصفی ح ر (۱۳۹۷) شناسایی دسته رخساره FSST در توالی‌های رودخانه‌ای با مثالی از سازند شوربجه، علوم زمین، ۹۷، ۱۱۳: ۲۸۳-۲۹۰.

[13]. Nichols G (2009) Sedimentology and stratigraphy, 10:1405135921, Blackwell Science Ltd, London, 1- 335.

[14]. Pemberton S G, Gingras M K (2005) Classification and characterizations of biogenically enhanced permeability, American Association of Petroleum Geologists Bulletin, 5, 89: 1493-1517.

[15]. Moore C H, Wade W J (2013) Carbonate reservoirs: Porosity and diagenesis in a sequence stratigraphic framework, Newnes.

[16]. Barclay S A, Worden R H (2000) Effects of reservoir wettability on quartz cementation in oil fields, Quartz Cementation in Sandstones, 29: 103-117.

[17]. Walderhaug O (1994) Precipitation rates for quartz cement in sandstones determined by fluid-inclusion microthermometry and temperature-history modeling, Journal of Sedimentary Research, 64, 2a: 324-333.

[18]. Bjorlykke K, Egeberg P k, (1993) Quartz cementation in sedimentary Basins, The American Association of Petroleum Geologists Bulletin, 77, 9: 1518- 1538.

[19]. Moussavi-Harami R, Brenner R (1992) Geohistory analysis and petroleum reservoir characteristics of lower cretaceous (Neocomian) sandstones, eastern Kopet Dag basin, Northeastern Iran, Bulletin of the American Association of Petroleum Geologists, 92, 76: 1200-1208.

[20]. Hendry J P (1993) Calcite cementation during bacterial manganese, iron and sulphate reduction in Jurassic shallow marine carbonates, Blackwell Publishing Ltd, 87-106.

[21]. Nordahl K, Ringrose PS (2008) Identifying the representative elementary volume for permeability in heterolithic deposits using numerical rock models, Mathematical Geosciences, 40, 7: 753-771.

[22]. Hubert J F, Reed A A (1978) Red-bed diagenesis in the East Berlin formation, Newark Group, Connecticut Valley, Journal of Sedimentary Petrology, 48, 1: 175-184.

[۲۳]. اسعدی ع، شاکری ع ر، کدخدایی ع، رحیم‌پور- بناب ح، چهارزی ع (۱۳۹۵) تاثیر کانی‌زایی انیدریت بر کیفیت مخزنی دولومیت‌های سازند عرب: مطالعه موردی در یکی از میادین هیدروکربنی خلیج فارس، پژوهش نفت، ۲۶، ۴: ۲۴-۱۳.

[۲۴]. فیض‌نیا س (۱۳۸۸) سنگ‌های رسوبی کربناته، دیاژنز کربنات‌ها، ۹ف۴/۱۵/۴۷۱، انتشارات آستان قدس رضوی، ۲۶۱-۲۰۶.

[25]. Barbier M, Lepretre R, Callot J P, Gasparrini M, Daniel J M, Hamon Y, Lacombe O, Floquet M (2012) Impact of fracture stratigraphy on the paleo-hydrogeology of the madison limestone in two basement-involved folds in the Bighorn basin (Wyoming, USA), Elsevier Journal, 567- 577, 5: 116- 132.

[26]. Love L G (1967) Early diagenetic iron sulphide in recent sediments of the Wash England, Geology Sedimentology, 9, 4: 265-361.

[27]. Elmore R D, Engel M, Crawford L, Nick K, Imbus S, Sofer, Z (1987) Evidence for a relationship between hydrocarbons and authigenic magnetite, *Nature*, 325, 119: 428-430.

[۲۸]. کدخدایی ع (۱۴۰۰) گزارش مطالعه تلفیقی نوع منافذ با استفاده از نمودارهای تصویری، نمودار انحراف سرعت و تجزیه طیفی نمودار صوتی، شرکت نفت مناطق مرکزی ایران، شرکت خدمات مهندسی نفت کیش، ۷۰-۱.

[۲۹]. کدخدایی ع (۱۳۹۷) ارزیابی سازندهای نفت دار، ۹۷۸۶۰۰۷۱۱۱۶۸۰، انتشارات دایره دانش، ۴۴۲-۳۹۹.

[۳۰]. تقوی م (۱۳۹۷) گزارش مطالعات نمودارهای تصویرگر، شرکت نفت مناطق مرکزی ایران، شرکت خدمات مهندسی نفت کیش، ۱۰۳-۱.

[31]. Movahed Z, Dashti R, Chakravorty S (2007) Geological and petrophysical analysis of Full Bore Formation Micro Imager (FMI), Feild Ahvaz, Well No.383. Well Services of Iran (Schlumberger Methods), Report No. 5627: 1-64.

[32]. Serra O (1989) Formation microscanner image interpretation, Schlumberger Educational Service, Houston, 117.

# تجزیه و تحلیل رخساره‌ای، محیط رسوبی و فرآیندهای دیاژنتیکی سازند ایلام میدان گچساران، حوضه زاگرس

مهدی احمدی نبی<sup>۱</sup>، داوود جهانی<sup>۱</sup> و بهمن سلیمانی<sup>۲\*</sup>

۱- گروه زمین‌شناسی، دانشکده علوم پایه، دانشگاه آزاد اسلامی واحد تهران شمال، ایران

۲- گروه زمین‌شناسی و حوضه‌های رسوبی، دانشکده علوم زمین، دانشگاه شهید چمران اهواز، ایران

تاریخ دریافت: ۱۴۰۰/۰۳/۲۱ تاریخ پذیرش: ۱۴۰۱/۰۴/۱۲

## چکیده

بررسی ویژگی‌های رسوبی سازندهای کربناته به‌عنوان یکی از مخازن عمده ذخیره‌سازی هیدروکربن، اهمیت بالایی دارد. به‌منظور تجزیه و تحلیل رخساره‌ای، محیط رسوبی، و تغییرات دیاژنتیکی سازند ایلام (گروه بنگستان) در میدان گچساران از داده‌های مقاطع نازک، و نمودارهای چاه‌پیمایی (لاگ) استفاده شده است. مطالعات پتروگرافی نشان داد این سازند منحصرأ در بخش غربی گسترش داشته، و با یک منطقه زیستی حاوی رخساره نریتیک ناحیه کم عمق دریا، مشخص می‌گردد. رخساره‌های رسوبی این سازند عمدتاً آهکی که گاهی (بسته به عمق حوضه رسوبی) به آهک شیلی تغییر می‌نماید. در چاه‌های بخش شرقی میدان گچساران، نبود عظیمی از رسوبات کنیاسین و تورونین مشاهده شد که علت آن تأثیر فاز فرسایشی بعد از سنومانین-تورونین و ایجاد ارتفاعات قدیمی به موازات گسل خارک-میش است. رخساره‌های تعیین شده بر روی یک پلاتفرم کربناته (شلف)، در سه محیط لاگون، پشته (شول) و لاگون دریای باز نهشته شده‌اند. رخساره‌های سازند ایلام محیط‌های مختلف دیاژنتیکی دریایی، متوریک، دفنی و نیز بالا آمدگی را تجربه نموده‌اند. این رسوبات در معرض فرآیندهای میکریتی شدن، فشردگی، سیمانی شدن، نئومورفیسم، انحلال، شکستگی و جانشینی (دولومیتی شدن، همتایتی شدن و پیریتی شدن) قرار گرفته‌اند. مهم‌ترین انواع تخلخل شامل حفره‌ای مرتبط، شکستگی و کانالی هستند، که نقش زیادی در تغییرات کیفیت مخزن داشته‌اند. بررسی مقادیر پارامترهای پتروفیزیکی نشان داد که میانگین تخلخل، اشباع آب و نسبت ضخامت مفید به کل متغییر بوده ولی به‌طور کلی به‌ترتیب  $2/3$ ،  $88/$  و  $16/0$  است. با توجه به پایین بودن میزان تخلخل، نقش شکستگی، و سایر فرآیندهای دیاژنتیکی در کیفیت مخزن قابل توجه است. فعالیت بلندی قدیمی در بخش شرقی نه تنها در توزیع رخساره‌ای محسوس است بلکه نقش عمده‌ای در تحولات بعدی سازند ایلام دارد. بنابراین کیفیت مخزنی سازند ایلام تابع عوامل متعدد رسوبی، دیاژنتیکی، و فعالیت تکتونیکی بوده، و لذا در بخش‌های مختلف متغییر خواهد بود.

**کلمات کلیدی:** میدان گچساران، سازند ایلام، نمودار چاه‌پیمایی، رخساره رسوبی، کیفیت مخزن

## مقدمه

آنالیز رخساره‌ای در اکتشاف و توسعه مخازن هیدروکربنی در سنگ‌های کربناته اهمیت بالایی دارد [۱]. کیفیت سنگ مخزن می‌تواند متأثر از شرایط رسوبی یا نوع رخساره رسوبی و فرآیندهای دیاژنزی مؤثر بر آن باشد [۲]. در مخازن هیدروکربنی، انواع مرتبط با سطوح ناپیوستگی، ۲۰ تا ۳۰٪ از کل ذخایر هیدروکربوری را شامل می‌شوند [۳]. تأثیر شرایط و فرآیندهای دیاژنزی جوی (ائوژنتیک/تلوژنتیک) بر بیرون زدگی‌ها، در حفظ، گسترش و یا تخریب تخلخل در این گونه مخازن با اهمیت است [۴-۵]. سیستم حفرات در طول زمان رخنمون، تحت شرایط جوی قرار می‌گیرند و دوره‌های کوتاه‌تر رخنمون در مقایسه با دوره‌های طولانی‌تر، افزایش بیشتر تخلخل و بهبود کیفیت مخزنی را موجب می‌شوند [۳]. تاکنون نظرات مختلفی در مورد مرز ناپیوستگی سنوماین فوقانی تا پایان تورونین در فروافتادگی دزفول ارائه شده است: در بالای منطقه زیستی ۲۹ [۶-۸]، در زیر منطقه زیستی ۲۹ [۹-۱۰]، به صورت دو ناپیوستگی [۱۱-۱۲] و یا یک ناپیوستگی اصلی در میانه منطقه زیستی ۲۹ [۱۳-۱۴]. نوشته‌ها و مقالات زیادی در خصوص سازند ایلام وجود دارد که از مهم‌ترین آنها می‌توان به موارد زیر اشاره کرد: وزیری مقدم [۱۵] زیست چینه‌نگاری سازند ایلام را در جنوب شرقی شیراز مطالعه کرده و در آن دو منطقه زیستی براساس فرامینیفرهای پلانکتون تشخیص داده است. وزیری مقدم و صفری [۱۶] میکروفاسیس و محیط رسوبی سازند را در منطقه سمیرم مطالعه و سن سازند ایلام را سانتونین و مدل رسوبی آن را فلات کربناته از نوع رمپ و سرمدی و همکاران [۱۷] محیط شول و دریای باز را برای آن در میدان نفتی سعادت‌آباد در نظر گرفته‌اند. هر چند براساس موقعیت سازند در حوضه زاگرس سن‌های مختلفی از جمله تورونین-کامپانین (شاهین [۱۸] در میادین مشترک ایران-عراق)، کنیاسین-سانتونین (خدایی و همکاران [۱۹] در ناحیه آبادان) و سانتونین (خسرو

تهرانی و همکاران [۱۹] در کوه عسلویه) بیان شده است. سپیانی و همکاران [۲۰] پتروگرافی و تاریخچه رسوبگذاری سازند ایلام در چاه‌های شماره ۱ و ۴ میدان نفتی ماله کوه (شمال باختری اندیمشک) را مورد بررسی قرار دادند. اسدی مهمان دوستی [۲۱] و اسدی مهمان دوستی و همکاران [۲۲-۲۳] به بررسی ژئوشیمی، محیط رسوبی و دیاژنزی سازند ایلام پرداخته‌اند. چهارده چریک [۲۴] زیست چینه‌نگاری سازند ایلام (مقطع تیپ (را براساس فرامینیفرهای پلانکتونیک، جنوب-غرب ایلام مورد بررسی قرار داد. ریختگرزاده و همکاران [۲۵] در مطالعه ریز چینه‌ای سازند سروک و ایلام در چاه ۳۳۵ در میدان گچساران، ۵ زیر رخساره در سازند ایلام تعیین نمودند. مهربانی و همکاران [۲۶] محیط رسوبی و سکانس چینه‌ای سازند ایلام در فروافتادگی دزفول را مطالعه نمودند. مدل‌سازی سازند ایلام در میادین نفتی جنوب غرب ایران توسط محققین مختلفی مطالعه شده است (مانند [۲۷-۲۸]). با بررسی پیشینه مطالعاتی، به نظر می‌رسد ارزیابی تکمیلی این سازند و تغییرات لیتولوژیکی آن، نیازمند بررسی و توجه به نقش تکتونیک در پتانسیل هیدروکربنی این سازند [۲۹-۳۰] و نیز استفاده از داده‌های حاصل از چاه‌های حفاری جدید است. مقاله کنونی تلاش می‌نماید که با آنالیز رخساره رسوبی و بررسی فرآیندهای مختلف دیاژنزی سازند ایلام در میدان گچساران با توجه به داده‌های چاه‌های حفاری جدید، تفسیر جدید و مدل رسوبی مناسبی را ارائه نماید.

## موقعیت جغرافیایی منطقه مورد مطالعه

میدان گچساران در ۵ km جنوب غربی شهرستان گچساران و ۲۰۰ km جنوب شرق شهرستان اهواز قرار دارد. این میدان از نظر ساختمان، تاق‌دیس کشیده و نامتقارن با محوری در جهت شمال غرب جنوب شرق به طول ۶۳ km و عرض ۶ تا ۱۲ km است. میدان گچساران به دلیل مجاورت و انضمام تاق‌دیس نسبتاً کوچک و ساده‌ای به نام لیشر در

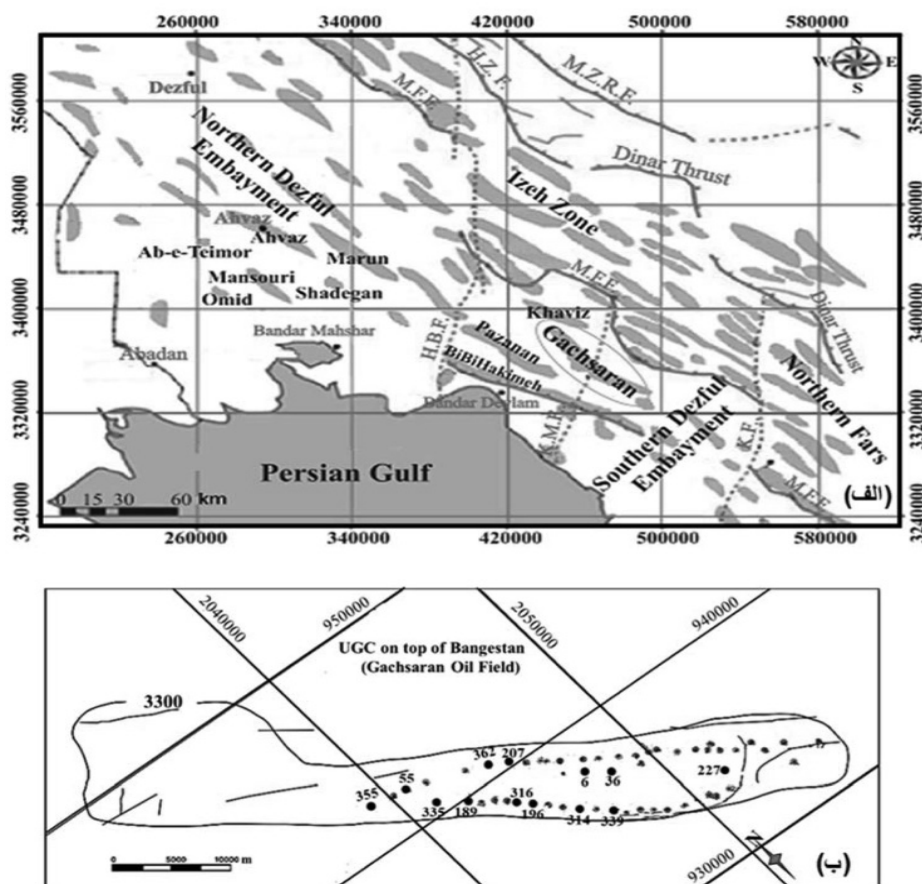


ضخامت محدود سازند ایلام و نیز نبود آن در بعضی از چاه‌های حفاری شده، تعداد ۲۰۰ مقطع نازک مربوط به سازند ایلام تفکیک و توسط میکروسکوپ پلاریزان مورد بررسی قرار گرفت. مجموع طول مغزه در چاه‌های مورد مطالعه ۱۲۵ m از چاه‌های ۳۵۵، ۳۶۲، و ۳۱۶ بود. در این مطالعه، در طبقه‌بندی سنگ‌ها از روش دانهام [۳۲]؛ در تفسیر ریزرخساره‌ها از مدل‌های شلاگر [۳۳] و فلوگل [۱]؛ در شناسایی تخلخل از طبقه‌بندی چوکت و پری [۳۴] استفاده گردید. با توجه به عدم امکان رنگ‌آمیزی مقاطع، شناسایی انواع تخلخل در میکروسکوپ با کمک تیغه ژپس و چسب اپوکسی با رنگ آبی انجام گرفت. به‌منظور اصلاح منطقه‌بندی مخزن بنگستان (سازندهای ایلام و سروک)، از نمودارهای چاه‌پیمایی (مانند گاما، نوترون، دانسیته) و همچنین نرم‌افزار سیکلولاگ نیز استفاده شد.

دماغه غربی آن، گچساران - لیشر نامیده می‌شود. این میدان و رخنمون‌های اطراف از نظر ژئومتری و هندسه رسوبی، تحت تأثیر ساختار خطی خارک - میش قرار گرفته است. تاقدیس میش در فاصله ۱۷ km شرق دو گنبدان (گچساران) و از نظر زمین‌شناسی در منطقه ایذه در کمربند ساده چین‌خورده زاگرس قرار دارد (شکل ۱).

### روش و ابزارهای مورد استفاده

در این مطالعه جهت بررسی پتروگرافی و همچنین تعیین و تفکیک رخساره‌های رسوبی، بررسی فرآیندهای دیاژنزی و تفسیر کیفیت مخزنی هر رخساره، از مقاطع نازک، داده‌های مغزه، و نمودارهای چاه‌پیمایی استفاده گردید. با بررسی تعداد ۱۳۱۴ مقطع نازک (شامل ۴۶۵ مقطع نازک از نمونه‌های مغزه و ۸۴۹ مقطع نازک تهیه شده کنده‌های حفاری) مربوط به مخزن بنگستان، به‌دلیل



شکل ۱ الف) نقشه موقعیت میدان گچساران و میادین همجوار [۳۱] و ب) موقعیت چاه‌های مورد مطالعه

رخساره اصلی (شامل: ۱-شول؛ ۲-لاگون‌های محدود شده و دارای ارتباط با دریای باز) نهشته شده‌اند.

#### ریزرخساره‌های شول یا پشته‌های زیرآبی<sup>۴</sup>

ریزرخساره شماره ۱- گرینستون: این ریزرخساره (شکل ۲ الف)، از فرامینیفرای کفزی با فراوانی بسیار زیاد (نظیر آلئولینیدا، نزازاتا، میلیولیدا و غیره)، خرده‌های رودیست و بایوکلاست‌ها (عمدتاً میکرایتی شده) و پلوئید است. فراوانی فرامینیفرهای بنتیک (اغلب میکرایتی شده) به حدی است که می‌توان در برخی موارد آن را بنتیک فرام گرینستون نامید. فابریک رسوبی نظیر جورشدگی خوب اجزاء بیانگر انرژی بالای محیط رسوب‌گذاری بوده و با توجه به این توضیحات، این ریزرخساره به بخش شول خصوصاً به سمت لاگون<sup>۵</sup> نسبت داده می‌شود.

#### ریزرخساره‌های لاگون محدود شده و دریای باز<sup>۶</sup>

ریزرخساره شماره ۲- وکستون حاوی خرده‌های رودیست و فرامینیفرای بزرگ: این ریزرخساره (شکل ۲ ب) شامل فرامینیفرهای کفزی بزرگ از قبیل آلئولینیدا، میلیولیدا و نزازاتا و خرده‌های کوچک رودیست و پلوئید در زمینه‌ای میکرایتی است. پدیده میکرایتی شدن در برخی بایوکلاست‌ها دیده می‌شود. این ریزرخساره معادل RMF16 فلوگل [۲۱] (مادستون- وکستون دارای میلیولید) است.

از مهم‌ترین نمودارهای به‌کار گرفته شده می‌توان به گامای تصحیح شده<sup>۱</sup>، تخلخل نوترون، چگالی، مقاومت، نمودار تخلخل مؤثر<sup>۲</sup> و نمودار اشباع شدگی آب مؤثر<sup>۳</sup> اشاره کرد. در این پژوهش، رخساره‌های سازند ایلام در ۹ حلقه چاه میدان گچساران مورد مطالعه قرار گرفت. در این راستا، ارزیابی محیط رسوبی توسط معیارهای رسوبی و پالئواکولوژیکی انجام شد.

### بحث

#### آنالیز رخساره‌ای سازند ایلام در میدان گچساران

با توجه به بررسی‌های به‌عمل آمده در زمینه توزیع رخساره‌های رسوبی سازند ایلام در چاه‌های مورد مطالعه این میدان آشکار شد که این سازند تنها در بخش غربی میدان مشاهده می‌شود ولی به سمت شرق میدان به واسطه وجود بلندی‌های دیرین، تحت تأثیر فرسایش و یا نبود رسوب‌گذاری قرار گرفته است. رخساره غالب سازند ایلام در بخش‌های کم عمق‌تر پلاتفرم کریناته در محیط‌های شول، لاگون مرتبط با دریای باز و لاگون محدود، تشکیل شده است.

مطالعات رخساره‌ای انجام گرفته منجر به شناسایی تعداد ۵ ریزرخساره (جدول ۱ و شکل ۲) در سازند ایلام شده که این ریزرخساره‌ها در ۲ کمر بند

جدول ۱ ریزرخساره‌های مشاهده شده سازند ایلام

محیط رسوبی	توصیف	رخساره
شول	گرین استون-فرامینیفر بنتیک (BF)، پلوئیدها	MF 1
لاگون	وکستون-بیوکلاست (رودیست، دوکفه‌ای، فقدان فرامینیفر بنتیک)	MF 2
لاگون	مادستون-وکستون، فرامینیفر بنتیک (والئولینا، نزازاتا، ....)-بیوکلاست (خرده رودیست)	MF 3
لاگون	پکستون دارای فرامینیفر بنتیک + خرده صدف	MF 4
لاگون-نیمه محدود	مادستون (فرامینیفر بنتیک نظیر میلیولیده، نزازاتا، ....)	MF 5

1. CGR=Corrected Gamma Ray

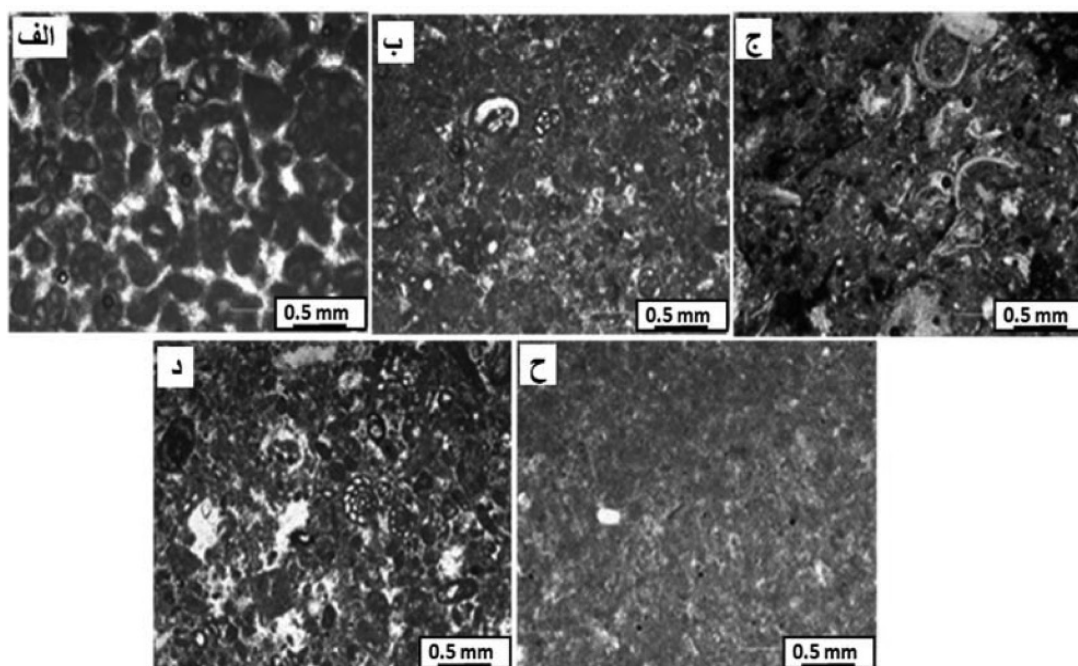
2. PHIE

3. SWE

4. Shoals

5. Back Shoal

6. Open Marine lagoon



شکل ۲ تصاویر میکروسکوپی از ریز رخساره‌های شناسایی شده شامل: الف- گرینستون (MF1)؛ ب- وکستون حاوی خرده‌های رودیست و فرامینیفرای بزرگ و دارای پلوئید (MF2)؛ ج- وکستون و مادستون حاوی قطعات جلبک و فرامینیفرای بنتیک (MF3)؛ د- وکستون و پکستون حاوی قطعات جلبک و فرامینیفرای بنتیک (MF4)؛ ه- مادستون با فونای لاگون محدود (MF5)، در چاه‌های ۳۳۵ و ۳۵۲ و ۳۱۶ میدان گچساران

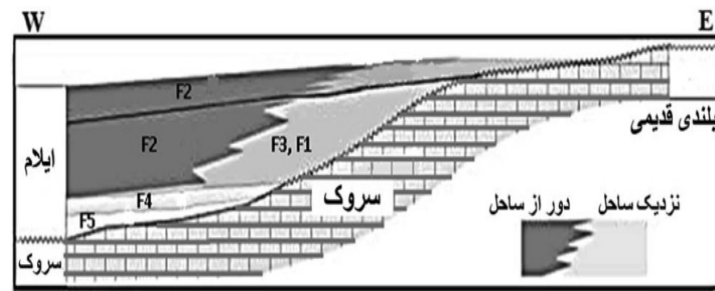
فرامینیفرهای کفزی از قبیل میلیولیدا، آلوئولینیدا و نزازاتا، قطعات دو کفه‌ای در زمینه‌ای گلی مشخص شده، و میلیولیدا بسیار فراوان‌تر از سایر فرامینیفرهای مورد اشاره است. در این ریز رخساره، فرامینیفرها دارای تنوع کمتری نسبت به ریزرخساره قبلی هستند. فراوانی میلیولیدا و فابریک گلی بیانگر محیط لاگون (محدود شده) است.

#### محیط و مدل رسوبی سازند ایلام

توزیع ریز رخساره‌های سازند ایلام همراه با تغییرات محیط رسوبی در **شکل‌های ۳ و ۴** ارائه شده است. رسوب‌گذاری در عمق‌های مختلف از دریاچه‌ای-قاره‌ای تا محیط‌های کم‌عمق و نسبتاً عمیق دریای باز صورت گرفته است. محیط دریاچه‌ای شیرین تا لب شور در زمان پایین بودن سطح آب دریا وجود داشته است. پس از آن پسروری آب دریا و خروج از آب، در مناطق فروافتاده تر رخساره‌های آب‌شیرین و لب‌شور رسوب کرده است. با شروع پیشروی و رسوب‌گذاری اولین رسوبات دریایی (F5) منجر به پایه‌گذاری شلف باز شده است.

ریزرخساره شماره ۳- وکستون و مادستون حاوی قطعات جلبک و فرامینیفرای بنتیک: قطعات جلبک سبز، فرامینیفرای کفزی مانند نزازاتا، میلیولیدا، آلوئولینیدا و خرده‌های رودیست و اویستر از آلوکم‌های غالب این ریزرخساره (**شکل ۲ ج**) هستند. با توجه به تنوع فرام‌های کفزی و حضور قطعات جلبک سبز، این ریزرخساره در محیط لاگون محدود با ارتباط اندک با آب‌های آزادتر رسوب‌گذاری شده است. ریزرخساره شماره ۴- وکستون و پکستون حاوی قطعات جلبک و فرامینیفرای بنتیک: قطعات جلبک سبز، فرامینیفرای کفزی مانند نزازاتا، میلیولیدا، آلوئولینیدا و خرده‌های رودیست از آلوکم‌های غالب این ریزرخساره (**شکل ۲ د**) هستند. با توجه به تنوع فرام‌های کفزی و حضور قطعات جلبک سبز، این ریزرخساره در محیط لاگون محدود با ارتباط اندک با آب‌های آزاد نهشته شده است.

ریزرخساره شماره ۵- مادستون با فونای محدود لاگون: این ریزرخساره (**شکل ۲ ح**) با مقدار کمتر



شکل ۳ مدل رسوبی مفهومی پیشنهادی برای سازند ایلام در میدان گچساران (F= فاسیس)

عمق (متر)	لینتولژی	رده بندی بافتی ماسنون وگستون پگستون کربن استون منپور	رنگه انحلالی استیلولیت	آلودگی نفتی	منطقه زیستی	سن بر اساس زیست چینه ای	دیسکوسیکلینا فلومبرجری	اگنولید	تزازاتا	پیکاردی	رودیت	الیگوستیرینا
۲۵۰۰					۴	تورونین- سالتونین						
۲۵۲۰												
۲۵۴۰					۲	سنومالین بالایی- تورونین						
۲۵۶۰												

شکل ۴ نمایش شماتیکی توزیع رخساره‌ها در سازند ایلام در چاه X میدان گچساران

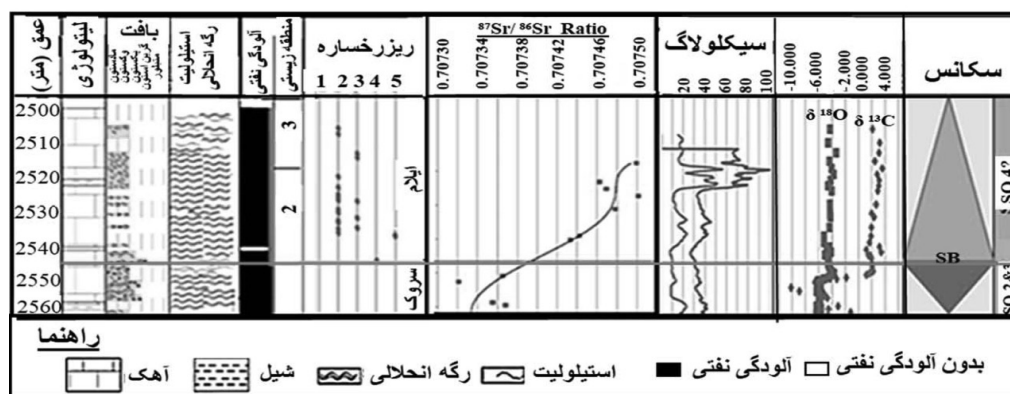
ایزوتوپی کربن و اکسیژن به سمت راس سازند دارای مقادیر مثبت تری است یعنی رسوب از ایزوتوپ‌های سبک غنی تر است. به طوری که روندهای افزایشی دما با سبک شدن نسبت ایزوتوپ کربن و روندهای کاهش دما با سنگین شدن این نسبت متناسب است؛ با وجود این، تغییرات نسبت ایزوتوپ کربن به عوامل بسیاری از جمله تغییرات مواد آلی و آثار زیستی بستگی دارد و به سادگی ایزوتوپ اکسیژن نیست [۳۷].

#### نقش بلندی‌های قدیمی در توزیع رخساره‌ای سازند ایلام

به منظور تفسیر توزیع رخساره‌ای سازند ایلام، ضخامت سازند با استفاده از داده‌های نمودارهای چاه‌پیمایی و نرم افزار پترل و همچنین مطالعه ۶ حلقه چاه مغزه دار و در بعضی موارد جهت رفع ابهام جهت تعیین سر سازندها از مقاطع نازک مطالعه گردید.

محیط عمیق تر با رخساره‌های (F1 و F2) مشخص می‌شود. روند رسوب گذاری در سازند ایلام به طور کلی حالت پیش رونده دارد (شکل ۳). تجزیه و تحلیل رخساره‌ای حاکی از این است که کربنات‌های سازند ایلام در این ناحیه از فروافتادگی دزفول در یک محیط پلاتفرم کربناته از نوع شلف تشکیل شده است. در شکل ۵ نیز تغییرات نسبت ایزوتوپی استرانسیم و نمودار سیکلولاگ (در یکی از چاه‌ها) نمایش داده شده است. این پارامترها تطابق خوبی را با تغییرات سکانسی نشان می‌دهند. روند تغییرات نسبت ایزوتوپی  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  به سمت راس سازند افزایشی جزئی نسبت به بخش زیرین (سازند سروک) نشان می‌دهد (از  $0.7073$  تا  $0.7075$ ). نسبت ایزوتوپی با سن سازند مطابقت داشته [۳۵]، این تغییر افزایشی می‌تواند مربوط به کم عمق شدن حوضه باشد [۳۶]. تغییر قابل ملاحظه این نسبت در عبور از سازند سروک به ایلام مشاهده می‌گردد. روند تغییرات نسبت





شکل ۵ تغییرات نسبت ایزوتوپی استرانسیم، اکسیژن و کربن و نمودار سیکلولاگ در چاه X گچساران [۳۸]

عملکرد بلندی قدیمی خارک - میش و توپوگرافی ایجاد شده در حوضه رسوبی میدان گچساران، باعث کاهش ضخامت ایلام در مرکز و حذف آن در بخش شرقی میدان شده است. ضخامت ایلام از ۶۶ m در گچساران - ۵۵ (غرب میدان) به ۴۴ m در چاه - ۳۶ (مرکز) و به صفر در چاه - ۲۲۷ (شرق میدان) کاهش یافته است. محدوده بلندی قدیمی خارک - میش در شکل ۶ الف در میدان گچساران و رخنمون های اطراف که به صورت تغییرات ضخامت سازندها در امتداد یال شمالی در شکل ۶ ج نمایش داده شده است. این تأثیر شامل موارد زیر است.

- عدم رسوب گذاری ایلام در شرق میدان و کاهش ضخامت آن در بخش های مجاور (شکل ۶).
- تأثیر آن بر روی سایر سازندها به صورت کاهش ضخامت در بخش شرقی میدان. به نظر می رسد این تأثیر بر رسوب سازند سروک کمتر از سایر سازندها باشد (شکل ۶ ج).
- بخش غربی میدان می تواند با بخش شرقی میدان تفاوت کلی داشته باشد (شکل ۶ ب و ۶ ج).

**فرآیندهای دیاژنزی**

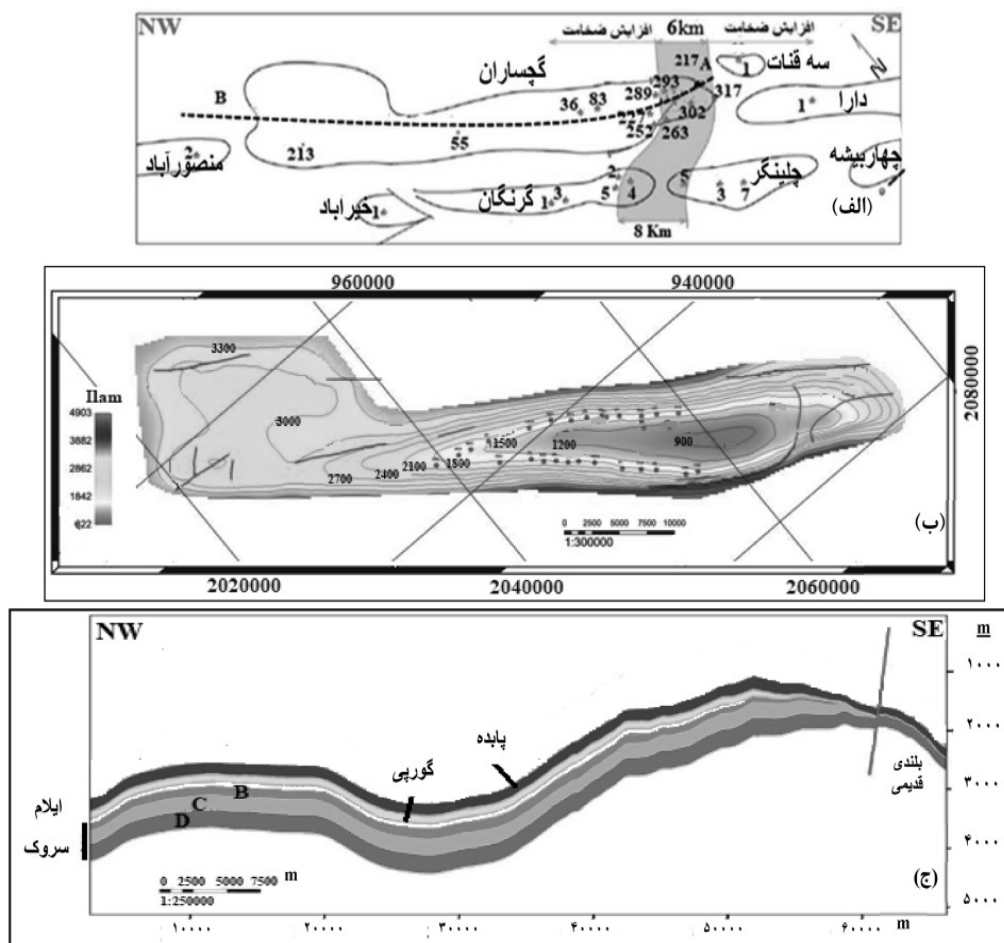
سنگ های کربناته از نظر اقتصادی اهمیت بسیار زیادی دارند [۳۹]. دیاژنز نقش عمده ای را در تخریب تخریل اولیه و ایجاد تخریل ثانویه در آنها ایفا می کند [۳۹ و ۴۱]. دیاژنز کربناته ها در ارتباط با فرآیندهای مختلفی است که در محیط های نزدیک به کف دریا، متئوریک و به طرف پایین تا

محیط دفن عمیق صورت می گیرد. این موضوع در ایجاد و تخریب تخریل در رسوب بسیار حائز اهمیت است [۴۲]. پیش از آغاز دیاژنز تخریل و تراوایی توسط ترکیب رسوبات و شرایطی که در طول رسوب گذاری غالب است کنترل می شوند [۴۳]. فرآیندهای دیاژنزی با اعمال تغییرات قابل ملاحظه بر روی رسوبات و سنگ های میزبان خود، موجب تغییر در سیستم اولیه حفرات شده و توزیع اولیه کیفیت مخزنی را دچار تغییرات اساسی می کنند [۲]. به طور کلی، دیاژنز به میزان قابل توجهی می تواند خواص مخزنی سنگ های کربناته را تغییر دهد [۴۱]. بنابراین فرآیندهای دیاژنزی در تعیین خصوصیات مخزنی سنگ های کربناته اهمیت بالایی دارند. کربناته های سازند ایلام در میدان نفتی گچساران تحت تأثیر طیف وسیعی از فرآیندهای دیاژنتیکی قرار گرفته اند. این فرآیندها به صورت شیمیایی و بیوشیمیایی شامل انحلال، سیمانی شدن، میکریتی شدن، استیلولیتی شدن، جانشینی دولومیتی شدن، همتیتی شدن و پیریتی شدن، و یا مکانیکی (فیزیکی) شامل فشردگی و شکستگی هستند.

#### میکریتی شدن

میکریتی شدن خرده های اسکلتی در کربناته های سازند ایلام به طور گسترده ای مشاهده شده است. میکریتی شدن اولین مرحله دیاژنتیکی است که در دیاژنز دریایی رخ می دهد [۴۴].





شکل ۶ الف) نمایش بالآمدگی قدیمی خارک میش (بخش قهوه‌ای)، ب) نقشه منحنی همتراز زیرزمینی (U.G.C.) بر روی افق ایلام، و ج) برش طولی ساختمانی و تأثیر بلندی قدیمی در ضخامت سازندها در امتداد یال شمالی میدان مورد مطالعه

تحت تأثیر قرار داده، فشردگی است. علاوه بر عمق تدفین، شدت فشردگی به ترکیب ذرات و نوع مواد پرکننده منافذ بستگی دارد [۴۶].

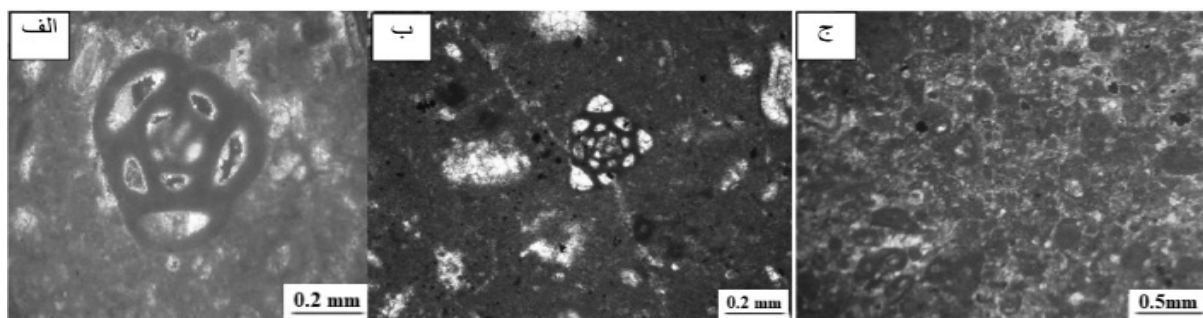
فشردگی به دو صورت فیزیکی و شیمیایی رخ داده است. فشردگی فیزیکی به عنوان تغییر شکل پلاستیک ذرات انعطاف پذیر [۴۷] و یا به صورت شکستگی بعضی از اجزای اسکلتی) مانند پوسته استراکد (شده است (شکل ۸ الف). استیلولیت‌ها اثرات فشردگی شیمیایی هستند که به عنوان آرایش نزدیک و تغییر شکل ذرات شناخته می‌شوند [۴۴].

فرآیند استیلولیتی شدن یکی از مهم‌ترین فرآیندهای دیاژنزی مؤثر در سازند ایلام بوده و به وفور مشاهده می‌شود. طبق تقسیم‌بندی فلوگل [۱].

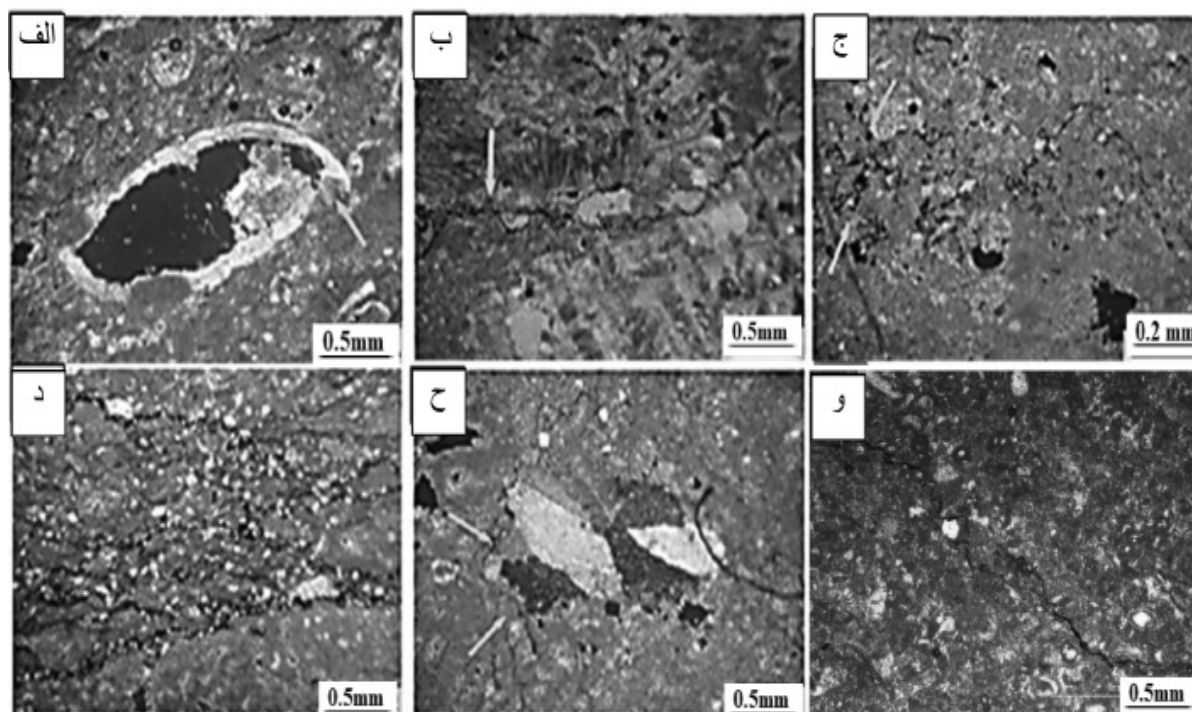
در سازند ایلام، پوشش‌های میکریته‌ای در اطراف بیوکلاست‌هایی از قبیل فرامینفرهای بنتیک عمدتاً در رخساره‌های پکستونی و گرینستونی تشکیل شده است (شکل ۷ الف و ۷ ب). در رخساره‌های وکستونی نیز به میزان کمی میکریته شدن اتفاق افتاده است. پوشش‌های میکریته با ضخامت‌های مختلف و معمولاً در محیط فراتیک دریایی در نزدیکی سطح تماس آب با رسوب تشکیل می‌شوند [۴۵]، این پوشش‌های میکریته باعث حفظ شکل کلی و مورفولوژی ذرات کربناته می‌شوند [۴۴]. همچنین در مواردی در اثر میکریته شدن شدید ساختار داخلی، اجزای اسکلتی به طور کامل از بین رفته است (شکل ۷ ج).

#### فشردگی

یکی دیگر از فرآیندهای دیاژنزی که سازند ایلام را



شکل ۷ تصاویر میکروسکوپی از تأثیر فرآیند میکریتی شدن در کربنات‌های سازند ایلام: الف- تشکیل پوشش میکریتی در اطراف میلیولید در رخساره وکستون؛ ب- تشکیل پوشش میکریتی در اطراف فرامینفر بنتیک در رخساره وکستونی؛ ج- میکریتی شدن پلوئیدها در رخساره پکستون پلوئیدی.



شکل ۸ تصاویر میکروسکوپی تأثیر فرآیند فشردگی فیزیکی و شیمیایی در کربنات‌های سازند ایلام: الف- شکستگی پوسته استراکد در رخساره وکستونی؛ ب- تشکیل استیلولیت نامنظم و کم دامنه در رخساره (فلوتستون- رودستون رودیستی؛ ج- استیلولیت‌های حلقوی در رخساره وکستونی؛ د- گسترش شدید استیلولیت‌ها) به صورت مجموعه پیچ در پیچ نامنظم (در رخساره وکستونی. دولومیت‌ها به میزان زیادی در امتداد استیلولیت‌ها تشکیل شده‌اند؛ ه- تشکیل رگچه‌های انحلالی در رخساره وکستونی؛ و- استیلولیت‌های پر شده با آغشتگی نفتی (چاه ۳۵۲ گچساران عمق ۲۵۵۰ m)

استیلولیت‌ها در سازند مورد مطالعه در رخساره های وکستونی بیشتر دیده شده، و رخساره های گرینستونی به دلیل تشکیل سیمان در دایزنز اولیه تحت تأثیر فشردگی کمتری قرار گرفته‌اند. در سازند ایلام رگچه‌های انحلالی نیز تشکیل شده‌اند (شکل ۸ ج) که نسبت به استیلولیت‌ها گسترش کمتری دارند.

استیلولیت‌های مذکور از نوع نامنظم حلقوی بوده و بیشتر به صورت مجموعه پیچ در پیچ نامنظم تشکیل شده‌اند (شکل ۸ ب، ۸ ج و ۸ د). این استیلولیت‌ها در رخساره گل پشتیان به راحتی تشکیل شده [۵]، دلیل گسترش آنها می‌باشد. فرآیند دولومیتی شدن در امتداد این استیلولیت‌ها به میزان زیادی مشاهده شده است (شکل ۸ د).

حفرات و شکستگی‌ها را به صورت بخشی یا کامل پر کرده است. همچنین، گاهی این نوع سیمان در قالب‌های حل شده اجزای اسکلتی تشکیل شده است. این نوع سیمان تقریباً در همه رخساره‌های سازندهای مورد مطالعه به صورت پرکننده حفرات و شکستگی (بیشتر در رخساره وکستونی)، و به صورت پرکننده قالب‌های قطعت اسکلتی (بیشتر در رخساره پکستونی و گرینستونی) مشاهده شد. سیمان بلوکی (شکل ۹ د) نسبت به سایر فابریک‌های سیمان دارای بیشترین فراوانی است. سیمان هم محور (شکل ۹ ج) معمولاً در محیط‌های فریاتیکی دریایی (نزدیک به سطح، وادوز دریایی و فریاتیکی متئوریک تشکیل می‌شود [۴۹].

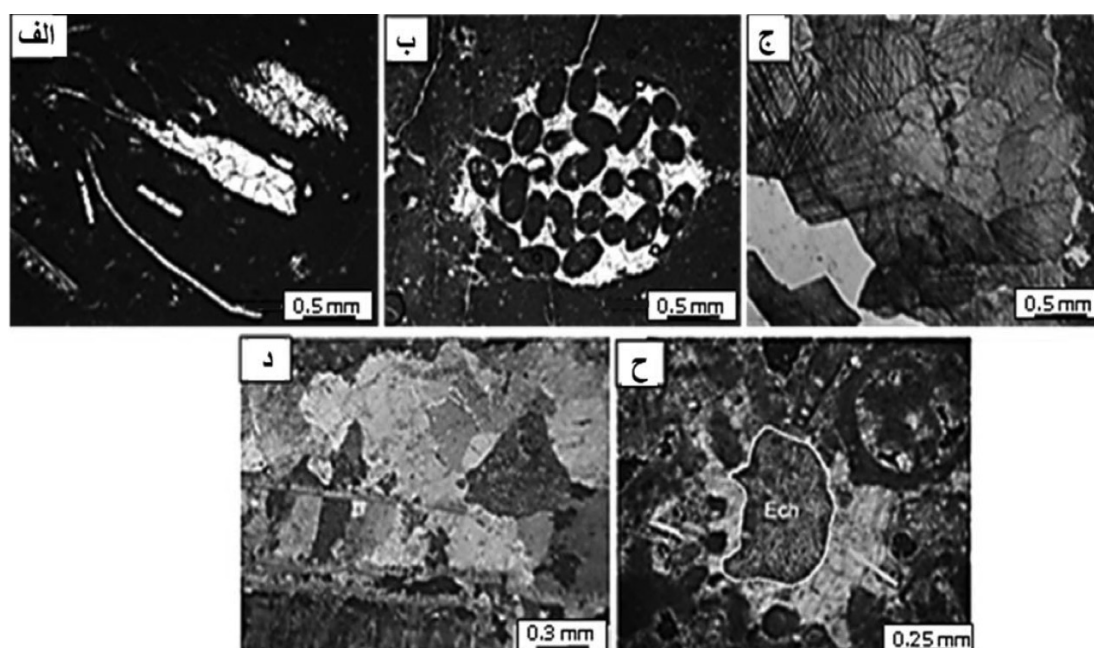
#### نئومورفیزم

تأثیر فرآیند نئومورفیزم در سازند ایلام به صورت بیشتر از نوع افزایشی) تبدیل میکریک به میکرواسپار (بوده) (شکل ۱۰ الف) که طی آن موزایک‌های درشت بلور همراه با تخریب جزئی یا کامل بافت قبلی سنگ ایجاد شده‌اند.

این رگچه‌ها بیشتر در رخساره‌های وکستونی تشکیل شده‌اند. استیلولیت‌ها در خیلی از موارد آغشتگی نفتی دارند (شکل ۸ و). استیلولیت به عنوان معبر یا کانال جریانی عمل نموده سپس توسط بخش‌های ریز دانه و یا مواد آلی پر می‌شوند. لذا در ابتدا موجب افزایش تخلخل و در نهایت کاهش تخلخل را در پی داشته و تنها هتروژنی مخزن را باعث می‌شوند.

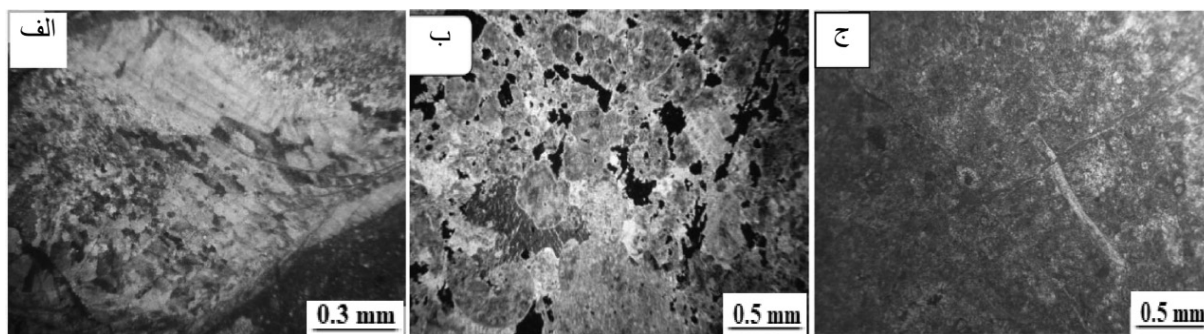
#### سیمانی شدن

انواع سیمان کربناته اغلب موجب تغییر یا تخریب حفرات سنگ می‌شوند [۴۱]. در سازند ایلام، سیمان از نوع کلسیتی بوده، دارای فابریک هم بعد، بلوکی، دروزی و هم محور یا سین تکسیال به صورت پرکننده حفرات، شکستگی‌ها (سیمان رگه‌ای) و منافذ اجزای اسکلتی است (شکل ۹). سیمان هم بعد با بلورهای شکل دار و نیمه شکل دار بیشتر در حجره قطعات اسکلتی) از جمله رودیست و فرامینیفرهای بنتیک) تشکیل شده، نشان دهنده محیط متئوریک و تدفینی است [۴۸، ۱]. سیمان با بلورهای درشت و شفاف (شکل ۹ الف الی ج)، فضاها را خالی



شکل ۹ تصاویر میکروسکوپی تأثیر فرآیند سیمانی شدن در کربنات‌های سازند ایلام: الف- سیمان هم ضخامت وابسته به فابریک (عمق ۲۵۲۱ m در چاه ۳۵۲)؛ ب- سیمان کلسیتی در اطراف دانه‌های پلوئید (عمق ۲۵۲۷ m چاه ۳۵۲)؛ ج- سیمان هم بعد (عمق ۲۵۴۱ m در چاه ۳۳۵)؛ د- سیمان کلسیت بلوکی در رخساره پکستون پلوئیدی؛ ح- سیمان هم محور در اطراف اکینوئید در رخساره پکستونی (Ech= اکینوئید)





شکل ۱۰ تصاویر میکروسکوپی از تأثیر فرآیند نئومورفیسم، انحلال و شکستگی در سازند ایلام: الف- نئومورفیسم، کلسیتی شدن در رخساره فلوئستون-رودستون رودیستی؛ ب- انحلال غیرفابریک انتخابی؛ ج- تخلخل حاصل از شکستگی در رخساره وکستونی

آنها به صورت جزئی و یا کامل توسط سیمان‌های کلسیت بلوکی و دروزی پر شده و به صورت رگه‌های کلسیتی درآمده‌اند (شکل ۱۰ ج) که در اندازه‌های مختلف در سازند ایلام تشکیل شده‌اند.

#### جانشینی

فرآیند جانشینی در کربنات‌های مورد مطالعه به صورت دولومیتی شدن، هماتیتی شدن و پیریتی شدن مشاهده شد. دولومیتی شدن- دولومیت‌ها به دو صورت مشاهده می‌شوند: (۱) بلورهای پراکنده در زمینه و (۲) مرتبط با استیلولیت. فرآیند دولومیتی شدن یکی از فرآیندهای غالب دیاژنز در سازند ایلام می‌باشد، که بیشتر به صورت دولومیت‌های مرتبط با استیلولیت است. در فرآیند دولومیتیزاسیون علاوه بر نقش دیاژنز کانی‌های رسی سازنده‌های شیلی (مانند کژدمی)، زمینه میکریتی یکی دیگر از منابع مهم تامین منیزیم است [۵۶-۵۷] که در جریان دیاژنز و فرآیند نئومورفیسم و تبدیل به بلورهای بزرگتر موجب آزاد شدن مقداری یون منیزیم می‌شود. بافت دولومیت به صورت ایدیوتوپیک می‌باشد (شکل ۱۱ الف).

هماتیتی شدن- در امتداد استیلولیت‌ها و رگچه‌های انحلالی و گاهی در زمینه میکریتی مشاهده می‌شود (شکل ۱۱ ب).

پیریتی شدن- فرآیند دیاژنتیکی است که در محیط‌های احیایی اتفاق می‌افتد [۵۸-۵۹].

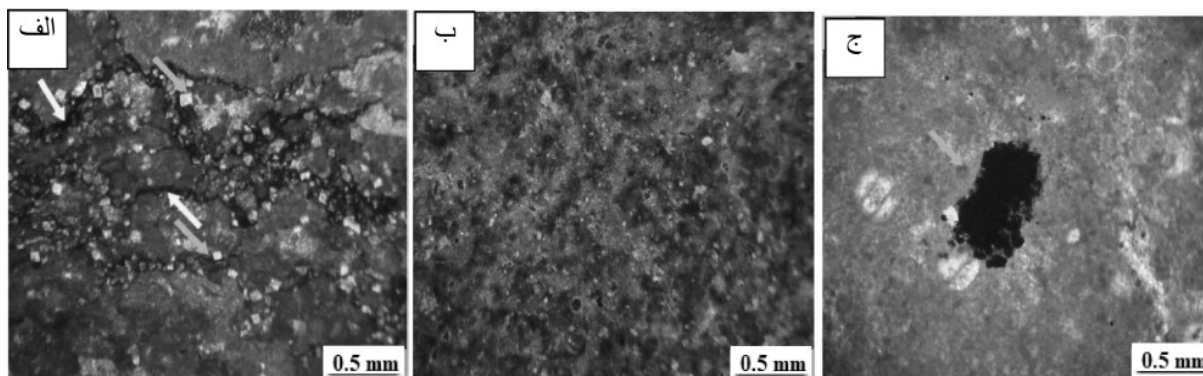
نئومورفیسم افزایشی بیشتر در رخساره‌های مادستونی و وکستونی، و کلسیتی شدن اجزای اسکلتی در انواع رخساره‌ها رخ داده است. کلسیتی شدن در محیط‌های متئوریک، دریایی و تدفینی و نئومورفیسم افزایشی طی دیاژنز تدفینی ممکن است رخ دهند [۵۰-۵۱].

#### انحلال

انحلال کانی‌های کربناته باعث ایجاد یا تغییر فضاهای خالی در سنگ مخزن می‌شود [۲ و ۵۲]. این فرآیند به صورت انحلال قطعات اسکلتی و ماتریکس رخ داده، باعث ایجاد انواع تخلخل ثانویه از قبیل حفره‌ای، قالبی و درون فسیلی شده است. انحلال اولیه آراگونیت و کلسیت با منیزیم بالا در محیط دیاژنتیکی دریایی یا در شرایط دفن کم عمق رخ می‌دهد [۵۳]. در سازند ایلام فرآیند انحلال به میزان بالایی تخلخل حفره‌ای ایجاد کرده (شکل ۱۰ ب)، و با وجود اینکه فرآیند سیمانی شدن بعضی از این حفرات را پر نموده، ولی درصد بالایی از آنها حفظ شده است.

#### شکستگی و پرشدگی

شکستگی نقش بسیار مهمی در تغییر خواص پتروفیزیکی مخازن کربناته ایفا می‌کند [۵۴-۵۵]. تعدادی از شکستگی‌های ایجاد شده به صورت باز و نیمه باز بوده، در افزایش تخلخل و تراوایی این سازند نقش داشته باشند. اگرچه این شکستگی‌ها در ایجاد تخلخل ثانویه مؤثر هستند، اما بسیاری از



شکل ۱۱ تصاویر میکروسکوپی از تأثیر فرایندهای دولومیتی، هماتیستی و پیریتی شدن در کربنات‌های سازند ایلام: الف- دولومیت و هماتیستی شدن در امتداد استیلولیت‌ها؛ ب- هماتیستی شدن در زمینه میکریستی؛ ج- پیریت دانه تمشکی جانشین شده در زمینه

دو ناپیوستگی فرسایشی مهم بعد از سنومانین و تورنین رخ داده است. این دو ناپیوستگی در میدان گچساران از غرب به سمت شرق مخزن در یکدیگر ادغام می‌شوند. هرچند ضخامت این زون از شمال غرب به طرف جنوب شرق کاهش می‌یابد.

حداکثر ضخامت آن در چاه‌های حفاری شده در غرب میدان حدود ۱۰۰ m و از غرب به سمت شرق روندی کاهشی دارد. میانگین تخلخل و اشباع آب در مخزن ایلام به ترتیب ۲/۳٪ و ۸۸٪ و نسبت ضخامت مفید به کل ۰/۱۶ می‌باشد. تغییرات تخلخل در بخش‌های مختلف از صفر تا ۱۰٪ و میزان اشباع آب از ۱۳ الی ۱۰۰٪ تغییرات نشان می‌دهد. مقادیر ضخامت مفید به کل، اشباع آب مؤثر و تخلخل مؤثر سازند ایلام را در بعضی از چاه‌ها **جدول ۲** ملاحظه می‌کنید. براساس آزمایشات معمولی مغزه، تخلخل نمونه‌های شکاف‌دار ۱/۴۲۷٪ و تراوایی آنها ۲/۵۶ mD و لی در نمونه‌های بدون شکاف ۱/۰۴٪ تخلخل و ۰/۰۵ mD تراوایی نشان دادند. تغییرات نفوذپذیری مخزن عمدتاً قبل از تأثیر اثر کلینکبرگ بین ۰/۰۱ الی ۹/۹۱ mD ولی بعد از اصلاح این اثر بین ۰/۰۵ تا ۰/۳۲۷۰۵ mD قرار می‌گیرد. در **شکل ۱۲** نمودارهای پتروفیزیکی و تغییرات پارامترهای گاما، تخلخل نوترونی، چگالی و نیز منحنی تغییرات INPEFA<sup>۱</sup> نشان داده شده است.

در سازند ایلام پیریت عمدتاً به صورت دانه تمشکی جانشین شده در زمینه مشاهده شده است (**شکل ۱۱ ج**). این فرآیند در سازند ایلام گسترش چندانی نداشته است.

#### توصیف مخزنی سازند ایلام

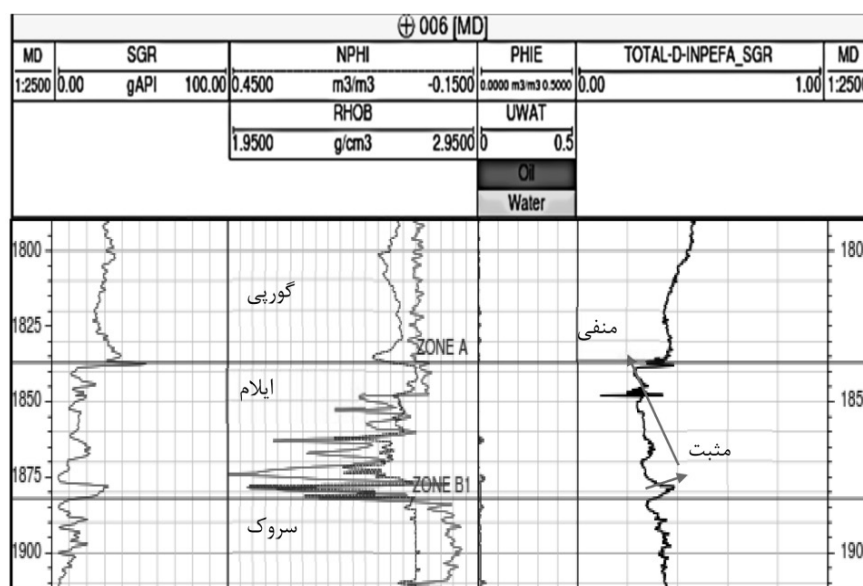
این مخزن از سنگ‌های کربناته (آهک و آهک‌های دولومیتی) با تخلخل کم تشکیل شده است. با توجه به تخلخل کم این سنگ‌ها (متوسط ۲/۵٪)، نقش مؤثر شکستگی‌ها در تولید از این مخزن به‌طور چشم‌گیری اهمیت دارد. بخش شرقی آن نسبت به قسمت‌های دیگر از پیچیدگی بیشتری بدلیل تأثیر از گسل‌های تراستی در جنوب و شمال میدان و ساختار خطی خارک - میش برخوردار است. گسل تراستی مورد اشاره در بخش جنوب شرقی میدان باعث گردید تا یال جنوبی مخزن آسماری و بنگستان تا ۷۵ درجه شیب پیدا کنند. بستگی ساختمانی مخزن ایلام در این میدان نیز با توجه به آخرین کنتور بسته (۲۷۰۰ m) (**شکل ۶ ب**) محاسبه شد. بخش بالایی سازند ایلام با ناپیوستگی فرسایشی به صورت مستقیم بر روی سازند سروک قرار گرفته است. این موضوع تفکیک دو واحد آهکی را مشکل کرده است. در راس سازند ایلام یک زون هوازده قرار می‌گیرد که در زیر آن لایه‌های آهکی - دولومیتی سازند ایلام قرار داشته که متعلق به محیط کم عمق است. در سازند ایلام

1. Integrated Prediction Error Filter Analysis



جدول ۲ داده‌های مخزنی سازند ایلام در بعضی از چاه‌ها با برش:  $PHIE=4.5$ ;  $SWE<50$ ;  $Vsh<50$ 

شماره چاه	۱۸۹	۱۹۶	۲۰۷	۳۱۴	۳۱۶	۳۳۵	۳۳۹
پارامتر							
ضخامت مفید به کل (m/m)	۰/۱۲۳	۰/۱۱۲	۰/۰۰۹	۰/۰۵۳	۰/۰۷۷	۰/۰۳۶	۰/۱۵۷
میانگین تخلخل مؤثر (v/v)	۰/۱۰۵	۰/۰۶۳	۰/۰۴۷	۰/۰۶۴	۰/۰۶۰	۰/۰۷۸	۰/۰۵۹
میانگین اشباع آب مؤثر (v/v)	۰/۲۷۹	۰/۲۳۳	۰/۱۶۹	۰/۱۸۸	۱۵۳/۰	۰/۴۲	۰/۲۲۵



شکل ۱۲ نمودار پتروفیزیکی سازند ایلام در چاه ۶ میدان گچساران

این منحنی از تبدیل منحنی PEFA حاصل شده، نشان دهنده اختلاف تجمعی بین مقادیر لاگ پیش بینی شده و مقادیر واقعی لاگ است. می‌توان این روند منفی را به عنوان پسروری و روند مثبت را به عنوان پیشروی در نظر گرفت. مثبت شدن به سمت بالا نشان دهنده افزایش رسوبات دانه ریز، عمیق شوندگی و هم چنین افزایش فاصله از خط ساحلی است. به عنوان مثال نمودار INPEFA در چاه شماره ۶، نشان دهنده کاهش عمق حوضه رسوبی به سمت رأس میدان یا پسروری دریا است.

این منحنی از تبدیل منحنی PEFA حاصل شده، نشان دهنده اختلاف تجمعی بین مقادیر لاگ پیش بینی شده و مقادیر واقعی لاگ است. منحنی PEFA را می‌توان با استفاده از یک لاگ حساس به رخساره مانند نمودار گاما محاسبه کرد [۶۰-۶۱]. در نرم افزار سیکلولاگ تغییرات زیاد PEFA ممکن است در ارتباط با حوادث زمین شناسی مثل تغییر در آب و هوا، دینامیک حوضه و وقفه های چینه شناسی باشد. اگر نمودار به سمت صفر تغییر کند، روند منفی یا کاهشی دارد. این روند منفی در منحنی

## نتیجه‌گیری

مطالعه رخساره‌ای سازند ایلام در چاه‌های حفاری شده میدان نفتی گچساران منجر به شناسایی تعداد ۵ ریزرخساره شده که در ۲ کمر بند رخساره‌ای اصلی نهشته شده‌اند. این کمر بنده و ریز رخساره‌ها عبارت‌اند از پشته‌های ساحلی (MF1 - گرینستون)؛ لاگون محدود شده و دریای باز (MF2 - وکستون حاوی خرده‌های رودیست و فرامینیفرای بزرگ؛ MF3 - وکستون و مادستون حاوی قطعات جلبک و فرامینیفرای بنتیک؛ MF4 - وکستون و پکستون حاوی قطعات جلبک و فرامینیفرای بنتیک و MF5 - مادستون با فونای محدود لاگون). آنالیز رخساره‌ای کربنات‌های سازند ایلام در میدان مطالعه شده نشان داد که این سازند در یک محیط پلاتفرم کربناته از نوع شلف تشکیل شده است.

کربنات‌های سازند ایلام در میدان نفتی گچساران تحت تأثیر طیف وسیعی از فرآیندهای دیاژنتیکی انحلال، سیمانی شدن، میکریتی شدن، استیلولیتی شدن، جانشینی به صورت شیمیایی و بیوشیمیایی (دولومیتی شدن، همتایتی شدن و پیریتی شدن)، فشردگی (فیزیکی و شیمیایی) و شکستگی (مکانیکی) قرار گرفته‌اند.

تغییرات پارامترهای پتروفیزیکی در مخزن ایلام

نشان داد که میانگین تخلخل، اشباع آب و نسبت ضخامت مفید به کل در مخزن ایلام به ترتیب ۲/۳٪، ۸۸٪ و ۰/۱۶ می‌باشد. مقادیر تخلخل و اشباع آب در بخش‌های مختلف به ترتیب از ۱۰-۰٪ و میزان ۱۰۰-۱۳٪ تغییرات نشان می‌دهد. با توجه به پایین بودن میزان تخلخل، نقش شکستگی و سایر فرآیندهای دیاژنتی در کیفیت مخزن اهمیت داشته، فعالیت بلندی قدیمی در بخش شرقی نیز در توزیع رخساره‌ای سازند ایلام مشهود است. بنابراین مخزن توسط عوامل متعدد رسوبی، دیاژنتی، تکتونیکی کنترل شده، کیفیت مخزنی آن در بخش‌های مختلف بسیار متغیر خواهد بود.

## تشکر و قدردانی

نویسندگان مقاله بر خود لازم می‌دانند که از بخش‌های پژوهشی دانشگاه آزاد، دانشگاه شهید چمران اهواز و مناطق نفت خیز جنوب تشکر و قدردانی نمایند. همچنین لازم است که از سردبیر محترم، داوران علمی مجله و همه کسانی که در این کار تحقیقی ما را به نحوی کمک و راهنمایی نموده و نظریات بسیار ارزشمند آنها در ارتقا کیفی مقاله مؤثر بوده، قدردانی و سپاس‌گزاری نمایند.

## مراجع

- [1]. Flügel E (2010) Microfacies of carbonate rocks, analysis interpretation and application: Berlin- Heidelberg, New York, Springer, 976.
- [2]. Lucia F J (2007) Carbonate reservoir characterization, Spring, 2nd ed, New York, 226.
- [3]. Weidlich O (2010) Meteoric diagenesis in carbonate below karst unconformities: heterogeneity and control factors: IN geological society, London, species Publication, 329: 291-315.
- [4]. Ahr W M (2008) Geology of carbonat reservoir, 1st Edition, John Wiley and Sons, 1-296.
- [5]. Ehrenberge S N, Pickard N A H, Laursen G V, Mossadegh Z K, Svana T A, Aqrabi A A M, McArthur J M, Thirlwall M F (2007) Strontium isotope stratigraphy of the Asmari formation (Oligocene- Lower Miocene), SW Iran: Journal of Petroleum Geology, 30, 2: 107-128.
- [6]. James G A, Wynd J G (1965) Stratigraphic nomenclature of Iranian oil consortium agreement area: American Association Petroleum Geology Bulletin, 40: 2182-224.
- [7]. Wood G V, Lacassagne R M (1965) The limestone of the Bangesan group of the Iranian oil consortium, agreement area, Iranian operating oil companies, Tehran, Report 1084.
- [8]. Wynd J G (1965) Biofacies of the Iranian oil consortium agreement area, GeoScience World, AAPG Bulletin, 12, 49: 89.
- [9]. Bourgeois F (1969) Kuh-e Bangesan: a model for cretaceous structures in Iran, Iranian Oil Operating Companies Report 89.

- [10]. Hart B B (1970) Upper Cretaceous, structural history and prospect of the Khuzeestan province: Iranian Oil Operating Companies report 1162, Unpublished.
- [11]. Khalili M (1976) The biostratigraphic synthesis of Bangesstan Group in southwest Iran: Iranian Oil Operating Companies, Geological and Exploration Division, Report 1219: 79.
- [12]. Razin P, Taati F, Vanburchem F S P (2010) Sequence stratigraphy of Cenomanian-Turonian carbonate platform margins (Sarvak Formation) in the High Zagros, SW Iran: an outcrop reference model for the Arabian Plate, Geological Society London, Special Publications, 329: 187-218.
- [۱۳]. غبیشاوی ع، رحمانی ع (۱۳۸۵) سکانس استراتیگرافی سازندهای ایلام و سروک در میدان نفتی آب تیمور چاه شماره ۱۴، گزارش شماره پ-۵۹۱۸، شرکت ملی مناطق نفت خیز جنوب، ۳۷.
- [14]. Khodaei N, Rezaee P, Honarmand J, Abdollahi-Fard I (2021) Microfacies analysis, sedimentary environment and sequence stratigraphy of the Ilam Formation (Coniacian? - Santonian) in the northwestern part of the Abadan Plain, Journal of Stratigraphy and Sedimentology Researches, 36, 4, 81: 109-134.
- [15]. Vaziri Moghaddam H (2002) Biostratigraphic study of the Ilam and Gurpi formations based on planktonic foraminifera in SE of Shiraz, Iran: Journal of Sciences, Islamic Republic of Iran, 13, 4: 339- 356.
- [۱۶]. تدینی م (۱۳۹۳) مدل سازی انواع شکستگی ها در سازند ایلام با استفاده از نگارهای تصویری و داده های آزمایش چاه در یکی از مخازن هیدروکربنی جنوب ایران، ماهنامه علمی اکتشاف و تولید نفت و گاز، ۱۰: ۶۳-۷۰.
- [۱۷]. سرمدی ر، موسوی حرمی س ر، محبوبی ا (۱۳۹۵) بررسی میکروفاسیس ها و محیط رسوبی سازندهای مخزنی ایلام و سروک در میدان نفتی سعادت آباد، پژوهش نفت، دوره ۲۶، ۵-۹۵، ۱۷۳-۱۶۱.
- [18]. Shahin Y (2019) Geology of West Karun oil fields shared between Iran and Iraq, AAPG Annual Convention and Exhibition, San Antonio, Texas.
- [19]. Khosrotehrani Kh, Baghbani D, Keshani F, Omrani M (2011) New founds in biostratigraphy of Ilam Formation at Kuhe Assaluyeh, (Zagros Province) Journal of Geoscience, 20, 78: 53-60.
- [۲۰]. سپیانی ح، محبوبی ا، موسوی حرمی ر، محمودی قزایی م ح، غفرانی ا (۱۳۸۹) فرآیندهای دیاژنز و تأثیر آن بر کیفیت مخزنی سازند ایلام، میدان نفتی ماله کوه، شمال باختری اندیمشک، مجله پژوهش نفت، ۲۰: ۶۵-۸۳.
- [۲۱]. اسدی مهماندوستی ا (۱۳۸۴) ژئوشیمی و دیاژنز سازند ایلام در میداین نفتی آب تیمور و منصوری و رخنمون تنگ رشیدکوه پیون، منطقه ایذه، پایان نامه کارشناسی ارشد، دانشگاه شهید بهشتی، ۳۱۱.
- [۲۲]. اسدی مهماندوستی ا، دانشیان ج، محمدپناه م ف (۱۳۹۸) بررسی ویژگی های رسوبی- دیاژنزی و ژئوشیمیایی سازند ایلام در شمال غرب آبدانان، کبیرکوه. پژوهش های چینه نگاری و رسوب شناسی، ۳۵، ۴: ۷۷-۱۰۴.
- [23]. Asadi Mehmandoosti E, Bdolmaleki S, Ghalavand H (2017) Microfacies, sedimentary environment and diagenesis of the Ilam Formation in an Oilfield of the Abadan plain, Applied Sedimentology, 5, 9: 21-39.
- [۲۴]. چهارده چریک غ (۱۳۸۵) زیست چینه نگاری سازند ایلام ( مقطع تیپ ( براساس فرامینیفرهای پلانکتونیک، جنوب غرب ایلام، پایان نامه کارشناسی ارشد، دانشگاه اصفهان، ۳۲۲.
- [25]. Rikhtegarzadeh M, Vaziry S M, Aleali M, Amir Bakhtiar H, Jahani D (2017) Microbiostratigraphy, microfacies and depositional environment of the Sarvak and Ilam Formations in the Gachsaran Oilfield, Southwest Iran, Micropaleontology, 63, 6: 413-428.
- [26]. Mehrabi H, Rahimpour-Bonab H, Enayati-Bidgoli A H, Navidtalab A (2013) Depositional environment and sequence stratigraphy of the Upper Cretaceous Ilam Formation in central and southern parts of the Dezful Embayment, SW Iran, Carbonate and Evaporites, 29, 3.
- [۲۷]. وزیری مقدم ح، صفری ا (۱۳۸۲) میکروفاسیس ها و محیط رسوبی سازند ایلام در منطقه سمیرم، مجله پژوهشی دانشگاه اصفهان (علوم پایه، ۱۸: ۷۴-۵۹.
- [28]. Zohrabzadeh M, Rahimpour-Bonab H, Aleali M (2020) The middle cretaceous – lower miocene 3D petroleum system modeling of kupal oil field, South West of Iran, Dezful Embayment: Geopersia, 10, 1: 165-194.
- [29]. Atashbari V, Tingay M, Amrouch K H (2018) Stratigraphy, tectonics and hydrocarbon habitat of the Abadan

- Plain Basin: a geological review of a prolific Middle Eastern hydrocarbon province, *Geosciences*, 8, 12: 496, 17.
- [30]. Rajabi M, Sherkati S, Bohloli B, Tingay M (2010) Subsurface fracture analysis and determination of in-situ stress direction using FMI logs: An example from the Santonian carbonates (Ilam Formation) in the Abadan Plain, Iran, *Tectonophysics*, 492: 192–200.
- [31]. Sherkati S, Letouzey J (2004) Variation of structural style and basin evolution in the Central Zagros (Izeh Zone and Dezful Embayment) Iran, *Marine and Petroleum Geology*, 21: 535–554.
- [32]. Dunham R J (1962) Classification of carbonate rocks according to depositional texture, *American Association of Petroleum Geologists (AAPG) Memoir*, 1: 108–121.
- [33]. Schlager M (2002) *Sedimentology and sequence stratigraphy of carbonate rocks*: Amsterdam (Vrije Universiteit/ Earth and Life Sciences), 146: 114.
- [34]. Choquette P W, Pray, L C (1970) Geological nomenclature and classification of porosity in sedimentary carbonates: *American Association of Petroleum Geologists (AAPG) Bulletin*, 54: 207– 250.
- [35]. Richter F M, Rowley D B, DePaolo D J (1992) Sr-isotope evolution of seawater: the role of tectonics, *Earth and Planetary Science Letters*, 109: 11–23.
- [36]. Zhang Y, Yang T, Hohl S V, Zhu B, He T, Pan W, Chen Y, Yao X, Jiang S (2020) Seawater carbon and strontium isotope variations through the late Ediacaran to late Cambrian in the Tarim Basin, *Precambrian Research*, 105769.
- [۳۷]. موسوی زاده س م ع (۱۳۹۸) بررسی روند تغییرات دمای دیرینه در نهشته‌های کربناته آپتین - آلبین در زون چین‌خورده- رانده زاگرس بر مبنای داده‌های ایزوتوپ اکسیژن. پژوهش‌های چینه‌نگاری و رسوب‌شناسی، ۳۵: ۱-۵۵.
- [۳۸] رحیم‌پور بناب ح (۱۳۹۱) چینه‌شناسی سازنده‌های ایلام و سروک با استفاده از ایزوتوپ استرانسیم و تعیین مرز آنها در بخش میانی فرو افتادگی دزفول، مناطق نفتخیز جنوب، طرح ۸۷-۱۱-۰۲۷۴، ۴۴۷.
- [39]. Neto I A L, Misságia, R M, Ceia M A, Archilha N L, Oliveira L C (2014) Carbonate pore system evaluation using the velocity–porosity–pressure relationship, digital image analysis, and differential effective medium theory, *Journal of Applied Geophysics*, 110: 23–33.
- [40]. Lamarche J, Lavenu A P C, Gauthier B D M, Guglielmi Y, Jayet O (2012) Relationships between fracture patterns, geodynamics and mechanical stratigraphy in carbonates (South-East Basin, France): *Tectonophysics*, 581: 231–245.
- [41]. Moore C H, Wade W J (2013) Carbonate reservoir porosity and diagenesis in a sequence stratigraphic framework: *Developments in Sedimentology*, 67: 1- 374.
- [42]. Tucker, M. E. (2001) *Sedimentary petrology: an introduction to the origin of sedimentary rocks*: Blackwell, Scientific Publication, London, 260.
- [43]. Makhloufi Y, Collin P Y, Bergerat F, Caesteley L, Claes S, David C H, Menendez B, Monna M, Robion P H, Sizun J P, Swennen R, Rigollet C H (2013) Impact of sedimentology and diagenesis on the petrophysical properties of a tight oolitic carbonate reservoir, The case of the oolithe Blanche Formation (Bathonian, Paris Basin, France), *Marine and Petroleum Geology*, 48: 323–340.
- [44]. Sahraeyan M, Bahrami M, Arzaghi S (2014) Facies analysis and depositional environments of the Oligocene-Miocene Asmari Formation, Zagros Basin, Iran, *Geoscience Frontiers*, 5: 1- 10.
- [45]. El-Saiy A K, Jordan B R (2007) Diagenetic aspects of tertiary carbonates west of the Northern Oman Mountains, United Arab Emirates, *Journal of Asian Earth Sciences*, 31: 35–43.
- [46]. Zhen-Kui J, Chun-Hui L (2008) Quantitative study on reservoir diagenesis in Northern Dagang Structural Belt, Huanghua Depression, *Petroleum Exploration and Development*, 35, 5: 581–587.
- [47]. Henares S, Caracciolo L, Cultrone G, Fernandez J, Viseras C (2014) The role of diagenesis and depositional facies on pore system evolution in a Triassic outcrop analogue (SE Spain), *Marine and Petroleum Geology*, 51: 136–151.
- [48]. Adabi M H, Asadi Mehmandošti E (2008) Microfacies and geochemistry of the Ilam Formation in the Tang-E Rashid area, Izeh, SW Iran, *Journal of Asian Earth Sciences*, 33: 267–277.
- [49]. Deville De Periere M, Durllet C, Vennin E, Lambert L, Bourillot R, Caline B, and Poli E (2011) Morphometry of micrite particles in Cretaceous microporous limestones of the Middle East, Influence on reservoir properties: *Marine and Petroleum Geology*, 28: 1727–1750.
- [50]. Hoseinabadi M, Mahboubi A, Mirab Shabestari G R, Motamed A (2016) Depositional environment, diagenesis, and geochemistry of Devonian Bahram Formation carbonates, Eastern Iran, *Arab Journal Geoscience*, 9: 70.
- [51] Tucker M E, Wright V P (1990) *Carbonate sedimentology*, Oxford, Blackwell Scientific Publications, 482.
- [52]. Shakeri A, Parham S (2014) Microfacies, depositional environment and diagenetic processes of the Maudud member, in a feld in the Persian Gulf, *Journal Geological Geoscience*, 2: 67–78.
- [53]. Aghaei A, Mahboubi A, Moussavi- Harami R, Nadjafi M, Hakrapani G J (2014) Carbonate diagenesis of

the Upper Jurassic succession in the West of Binalud- Eastern Alborz (NE Iran), Journal Geological Society of India, 83: 311- 328.

[54]. Ebadati N (2018) Fractures effect in reservoir quality of Ilam and Sarvak formations in Hengam oilfield using imaging logs, Journal of Geological Society of India, 92: 491-497.

[55]. Vandeginste V, John C M, Manning C (2013) Interplay between depositional facies, diagenesis and early fractures in the Early Cretaceous Habshan Formation, Jebel Madar, Oman: Marine and Petroleum Geology, 43: 489-503.

[56]. Hood S D, Nelson C S, Kamp P J J (2004) Burial dolomitisation in a cool-water carbonate petroleum reservoir: the Oligocene Tikorangi Formation, Taranaki Basin, New Zealand: Sedimentary Geology, 172: 117-138.

[57]. Mehmood M, Yaseen M, Khan E U, Khan M J (2018) Dolomite and dolomitization model- A short review, International Journal of Hydrology, 2, 5: 549-553.

[58]. Hajikazemi E, Al-Aasam I S, and Coniglio M (2010) Subaerial exposure and meteoric diagenesis of the Cenomanian-Turonian Upper Sarvak Formation, southwestern Iran, Geological Society, London, Special Publications, 330: 253-272.

[59]. Wang Y M, Hendy I L, Latimer J C, Bilardello D (2019) Diagenesis and iron paleo-redox proxies: New perspectives from magnetic and iron speciation analyses in the Santa Barbara Basin, Chemical Geology, 519: 95-109.

[60]. Soua M (2012) Application of facies associations, integrated prediction error filter analysis, and chemo-stratigraphy to the organic-rich and siliceous Cenomanian-Turonian sequence, Bargou Area, Tunisia: Integrated sequence stratigraphic analysis, Journal of Geological Research, 15.

[61]. Yuan R, Zhu R, Qu J, Wu J, You X, Sun Y, Zhou Y (2018) Utilizing integrated prediction error filter analysis (INPEFA) to divide base-level cycle of fan-deltas: A case study of the Triassic Baikouquan Formation in Mabei Slope Area, Mahu Depression, Junggar Basin, China, Open Geoscience, 10: 1.



# حذف کلرید منیزیم توسط غشاهای نانوفیلتراسیون تهیه شده از نانوذرات اکسید مس

شکیبا قهیه‌ئی، عبدالرضا مقدسی<sup>\*</sup>، سمانه بنده‌علی<sup>\*</sup>، مرتضی حبیبی و مریم اسکندری

دانشکده مهندسی شیمی، دانشکده فنی مهندسی، دانشگاه اراک، ایران

تاریخ دریافت: ۱۴۰۰/۱۰/۲۰ تاریخ پذیرش: ۱۴۰۱/۰۳/۲۳

## چکیده

در این تحقیق ابتدا نانوذرات مس اکسید تک ظرفیتی به‌روش الکتروشیمیایی سنتز شدند و از نانوذرات سنتز شده برای اصلاح و ساخت غشاهای نانوفیلتراسیون بر پایه پلی‌اترسولفون استفاده شد. غلظت‌های مختلفی از نانوذرات مس اکسید تک ظرفیتی به‌عنوان افزودنی در پلی‌اترسولفون به‌عنوان ماتریس غشایی جهت تهیه غشاهای نانوفیلتراسیون PES/Cu<sub>2</sub>O مورد استفاده قرار گرفت. غشاهای تهیه شده توسط تبدیل فوریه فروسرخ (FT-IR) و میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) آنالیز شدند. تجزیه و تحلیل FTIR تشکیل پیوندهای مطلوب را در نانوذرات سنتزی مس اکسید تک‌ظرفیتی و غشاهای ساخته شده، نشان داد. عملکرد جداسازی غشاهای ساخته شده با شار آب خالص و پس‌دهی کلرید منیزیم مورد بررسی قرار گرفت. نتایج بالاترین شار آب خالص ۳۶/۷۸ L/m<sup>2</sup>h را برای غشای ساخته‌شده M1 در ۰/۰۵٪ وزنی نانوذرات Cu<sub>2</sub>O نشان داد. علاوه‌بر این، بالاترین میزان پس‌دهی ۷۲٪ در ۲٪ وزنی نانوذرات مس اکسید تک ظرفیتی برای غشای ساخته شده M5 گزارش شد.

**کلمات کلیدی:** غشای نانوفیلتراسیون، حذف کلرید منیزیم، نانوذرات مس اکسید، روش‌های اصلاح، خواص جداسازی

## مقدمه

و مواد نانو به‌عنوان خود غشاء و یا به‌عنوان یک ماده افزودنی در ماتریس غشاء یکی از روش‌های امیدوارکننده برای افزایش عملکرد جداسازی غشاء و خواص فیزیکی و شیمیایی آن‌ها است [۱-۵]. گرافن اکساید، نانوذرات اکسید فلز، نانولوله‌های کربنی و ... به‌عنوان یک نانومواد آب‌دوست برای ساخت غشاء مورد مطالعه قرار گرفته‌اند [۶ و ۷]. سنتز نانوساختارهای اکسید فلزی با ساختار کنترل شده، خواص نوری، مغناطیسی، حرارتی و کاتالیزوری مفیدی را به نمایش می‌گذارد [۸].

فن‌آوری غشاء و فرآیندهای غشایی به‌عنوان روش‌های جذاب در فرآیندهای جداسازی اخیراً رو به رشد بوده است. غشاهای نانوفیلتراسیون یکی از انواع غشاهای فیلتراسیون هستند که عملکرد جداسازی بسیار خوبی را برای نمک‌های تک‌ظرفیتی و چندظرفیتی نشان داده‌اند. استفاده از فن‌آوری نانو

\*مسئول مکاتبات

آدرس الکترونیکی

a-moghadassi@araku.ac.ir

s-bandehali@phd.araku.ac.ir

شناسه دیجیتال: (DOI:10.22078/PR.2022.4700.3113)

افزودنی‌های آمین عامل‌دار شده از نانوذرات مس (II) اکسید و روی اکسید بر خصوصیات نفوذپذیری و مورفولوژی غشای نانوکامپوزیتی اولترافیلتراسیون پلی‌اترسولفون را بررسی کردند. سپس از مقایسه دو گروه آمین عامل‌دار شده مشخص شد که کاربرد نانوساختار آمین عامل‌دار شده با مس اکسید در شبکه پلیمری پلی‌اترسولفون یک تأثیر مثبتی در نفوذپذیری داشت که از  $554/2$  به  $886/6 \text{ kg/m}^2 \cdot \text{h}$  با  $0/5$  درصد وزنی آمین عامل‌دار شده مس اکسید رسید. از این طریق، میزان آب‌دوستی و تخلخل غشاء افزایش یافت و منجر به بهبود قابل توجهی در میزان شار آب خالص شد. در این مطالعه، نانوذرات مس اکسید به‌روش الکتروشیمیایی سنتز شدند. این نانوذرات به‌طور گسترده در سلول‌های خورشیدی، حسگرها (حسگرهای زیستی و گاز)، دستگاه‌های حافظه پلیمری، دستگاه‌های نیمه‌رسانا، به‌عنوان فوتوکاتالیست و الکتروکاتالیست، باتری‌های یونی لیتیوم استفاده می‌شوند [۱۵-۱۷]. استفاده از نانوذرات اکسید مس تک ظرفیتی در ساخت غشاهای نانوفیلتراسیون گزارش نشده است. نانوذرات سنتز شده اکسید مس تک ظرفیتی در ساختار غشاهای PES مورد استفاده قرار گرفتند. از آنجایی که میزان بالای کلرید منیزیم باعث سختی آب می‌شود و مقدار آن براساس استاندارد ملی باید محدود باشد، توجه به مقدار کلرید منیزیم در آب آشامیدنی ضروری است. بنابراین، غشاهای ساخته شده جهت حذف کلرید منیزیم از آب مورد استفاده قرار گرفتند. غشاهای اصلاح شده و اصلاح نشده با آنالیزهای FTIR و SEM مشخص شدند. سپس عملکرد جداسازی غشاهای آماده شده با شار آب خالص و پس‌دهی نمک  $\text{MgCl}_2$  مورد بررسی قرار گرفت.

در بین نانوذرات اکسیدهای فلزی، از نانو ذرات مس اکسید به‌صورت محدودتری استفاده شده است. مس اکسید یک ماده با قابلیت بالا جهت حذف آلاینده‌ها در فرآیندهای غشایی است و یک اکسید فلزی ارزان قیمت، غیرسمی است که می‌تواند به آسانی با پلیمرها مخلوط شود و خواص فیزیکی شیمیایی پایداری از خود بروز دهد. همچنین، خواص ضد میکروبی فوق العاده‌ای در برابر میکروب، قارچ، جلبک و باکتری از خود نشان می‌دهد [۹ و ۱۰]. فرهاد زارعی و همکارانش [۱۱] نانوذرات ترکیبی کبالت فریت مس (II) اکسید با روش رسوب‌دهی شیمیایی سنتز کردند و از آن برای ساخت غشای پلی‌اترسولفون در فرآیند نانوفیلتراسیون استفاده کردند. نتایج به‌دست آمده کاهش زاویه تماس و زبری غشاء و افزایش شار آب خالص از  $12$  به  $34/5 \text{ L/m}^2 \cdot \text{h}$  را نشان داد. راندیپ سیک و همکارانش [۱۲] یک غشای اولترافیلتراسیون شبکه آمیخته پلی‌سولفون اصلاح شده با فوتوکاتالیست مس (II) اکسید به‌روش وارونگی فاز ساختند. فوتوکاتالیست مس (II) اکسید نیز از روش الکتروپوزیشن ساخته شده بود. برای آنالیز ضد گرفتگی غشاء از محلول آبی نفوذی آلومین سرم گاوی (BSA) و برای حذف آلاینده دارویی ایبوپروفن استفاده شد. براساس بررسی نتایج مشخص شد که شار و تخلخل و اندازه حفرات و آب‌دوستی غشاء بهبود یافته بود، به‌طوری که حذف دارویی ایبوپروفن به  $86\%$  رسید. زهای ایکسیو و همکارانش [۱۳] روش مؤثری برای ساخت غشای آنتی‌میکروبیال با خواص ضدباکتریایی خوب و پایدار ارائه کردند. آنها یک غشای پلی‌سولفون ترکیب شده با نانوسیم‌های نقره مس (I) اکسید با روش تغییر فاز تهیه کردند. با انجام تست‌های آنتی‌باکتریال گزارش کردند که غشاهای ترکیب شده دارای اثر آنتی‌باکتریال تقویت شده در برابر هردو اسپرچیا کولی<sup>۱</sup> و استافیلوکوکوس اورئوس<sup>۲</sup> دارد. نازنین نصرالهی و همکارانش [۱۴] تأثیر

1. Escherichia Coli  
2. Staphylococcus Aureus

## مواد و روش انجام آزمایش‌ها

## مواد مورد استفاده

پلی‌اترسولفون (PES) تهیه شده از شرکت BASF به‌عنوان ماده تشکیل‌دهنده بدنه غشاء با وزن ملکولی ۵۸۰۰۰ گرم بر مول، پلی‌وینیل پیرولیدین (PVP) تهیه شده از Merck آلمان به‌عنوان حفره‌ساز با وزن مولکولی ۲۵۰۰۰ g/gmol استفاده شد. از دی‌متیل استامید (DMAC) تولید شده توسط شرکت Merck نیز به‌عنوان حلال پلیمر با وزن مولکولی ۸۷/۱۲ g/gmol استفاده گردید. همچنین، آب بدون یون به‌عنوان حمام غیرحلال در آزمایشات مورد استفاده قرار گرفتند. از نانوذرات مس (I) اکسید ( $\text{Cu}_2\text{O}$ ) (شکل ۱)، که با روش الکتروشیمیایی سنتز شدند به‌عنوان اصلاح‌کننده سطح غشاء مورد استفاده قرار گرفت. از کلرید منیزیم ( $\text{MgCl}_2$ ) ساخت شرکت Merck برای بررسی عملکرد غشاها استفاده شد.

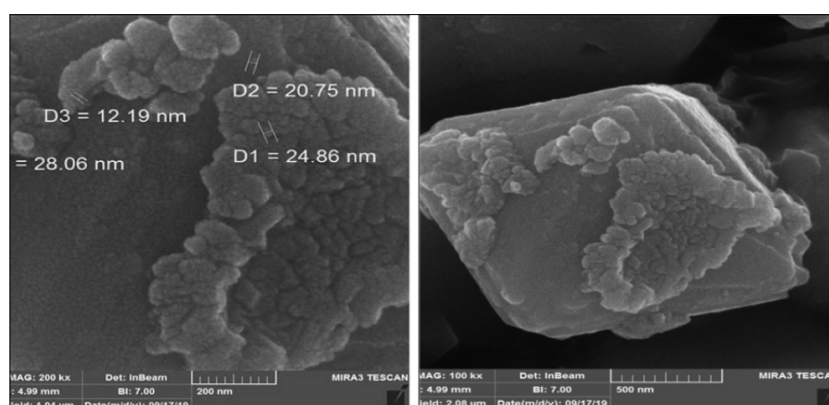
## سنتز نانوذرات

پس از مطالعه و تحقیق در زمینه تولید مس (I) اکسید با یک روش بهینه سرانجام این نتیجه حاصل شد که روش الکتروشیمیایی به‌دلیل مراحل کوتاه تولیدی، راهبری آسان‌تر، تولید در مقیاس بالاتر، کیفیت بالاتر، مقرون به‌صرفه بودن و کنترل شرایط عملیاتی آسان‌تر برای تولید در مقیاس انبوه در بین روش‌های دیگر مناسب‌تر است [۲۳-۱۸]. روش الکتروشیمیایی بر پایه الکترولیز محلول آبی نمک

طعام با افزودن سدیم هیدروکسید می‌باشد. در این روش، آندی از جنس مس با خلوص (۹۹/۹۹٪) و کاتد الکترودی از جنس استنلس استیل به ابعاد ۵۶×۵۰ mm استفاده شد [۲۴]. واکنش در یک سل الکترولیتی در شرایط عملیاتی با دمای ۸۰ °C و ۱۰/۱ = pH در ولتاژ ثابت ۲ V به‌مدت زمان ۳۰ min صورت گرفت. رسوب تشکیل شده حاصل از الکترولیز و انحلال آندی مس، بعد از ته‌نشینی برای از بین بردن یون کلرید چندین مرتبه با آب مقطر شست و شو شده و سپس در هوای اتاق خشک شد. برای جلوگیری از آلوده شدن محصول با مس فلزی از دیافراگم از جنس پلی‌پروپیلن در اطراف کاتد استفاده شد.

## ساخت غشاهای نانوفیلتراسیون پلی‌اترسولفون

غشاهای نانوفیلتراسیون توسط روش وارونگی فاز و غوطه‌وری در آب بدون یون ساخته شدند. برای ساخت غشاها با این روش، محلول‌های پلیمری حاوی پلی‌اترسولفون به‌عنوان پلیمر بدنه، پلی‌وینیل پیرولیدین به‌عنوان حفره‌ساز، نانوذرات مس (I) اکسید در غلظت‌های مختلف به‌عنوان اصلاح‌کننده و دی‌متیل استامید به‌عنوان حلال به‌مدت ۵ h توسط یک همزن مغناطیسی با سرعت ۳۰۰ rpm هم زده شدند تا مواد به‌طور کامل حل شده و محلول‌های یکنواختی حاصل شود. ترکیب درصد محلول‌های پلیمری تهیه شده در جدول ۱ آمده است.



شکل ۱ آنالیز FESEM نانوذرات سنتز شده مس (I) اکسید

جدول ۱ مشخصات ترکیب درصد محلول‌های پلیمری غشاهای ساخته شده

شماره غشاء	پلی‌اتر سولفون (%wt)	پلی‌وینیل پیرولیدین (%wt)	نانو ذره مس (I) اکسید (%wt)	دی‌متیل استامید (%wt)
M0	۱۸	۱	۰/۰۰	۸۱/۰۰
M1	۱۸	۱	۰/۰۵	۸۰/۹۵
M2	۱۸	۱	۰/۱۰	۸۰/۹۰
M3	۱۸	۱	۰/۵۰	۸۰/۵۰
M4	۱۸	۱	۱/۰۰	۸۰/۰۰
M5	۱۸	۱	۲/۰۰	۷۹/۰۰

در رابطه ۱  $f_p, V_m, W_d, W_w$  به ترتیب وزن غشاء خیس و خشک بر حسب گرم، حجم غشاء (نماد واحد) و دانسیته آب (نماد واحد) می‌باشد. جهت اندازه‌گیری وزن خیس و خشک غشاها، ابتدا نمونه‌های غشایی به مدت ۲۴ h در داخل آب بدون یون قرار داده شدند. سپس وزن آن‌ها با ترازو اندازه گرفته شد. پس از آن غشاها درون آون به مدت ۸ h با دمای  $50^\circ\text{C}$  قرار دادیم تا به‌طور کامل خشک شوند و وزن آن‌ها نیز اندازه گرفته شود [۲۷-۲۵].

$$r_m \equiv \sqrt{\frac{(2.9 - 1.75\varepsilon)8\eta LQ}{\varepsilon A \Delta p}} \quad (2)$$

$\varepsilon$  تخلخل غشاء،  $\eta$  ویسکوزیته آب  $(8.9 \times 10^{-4} \text{ Pa.s})$ ،  $L$  ضخامت غشاء بر حسب  $Q$ ،  $m$  حجم شار آب خالص خروجی از غشاء بر حسب  $\text{m}^3/\text{s}$  است.  $A$  سطح مقطع غشاء بر حسب  $\text{m}^2$  و  $\Delta p$  فشار عملیاتی  $(0.45 \text{ MPa})$  می‌باشد [۲۸].

#### شار و عملکرد جداسازی غشاء

عملکرد غشاهای ساخته شده توسط یک سل فیلتراسیونی ته بسته<sup>۱</sup> مانند شکل ۲ با مساحت سطح مؤثر  $11/94 \text{ cm}^2$  اندازه‌گیری شد. یک همزن الکتریکی درون سیستم جهت کاهش اثر پلاریزاسیون غلظتی و عدم تشکیل کیک بر روی سطح غشاء به کار گرفته شد. همچنین، یک مخزن گاز نیتروژن به عنوان تأمین کننده نیروی محرکه جهت انتقال جرم با یک شیر تنظیم کننده فشار خروجی نیز مورد استفاده قرار گرفت.

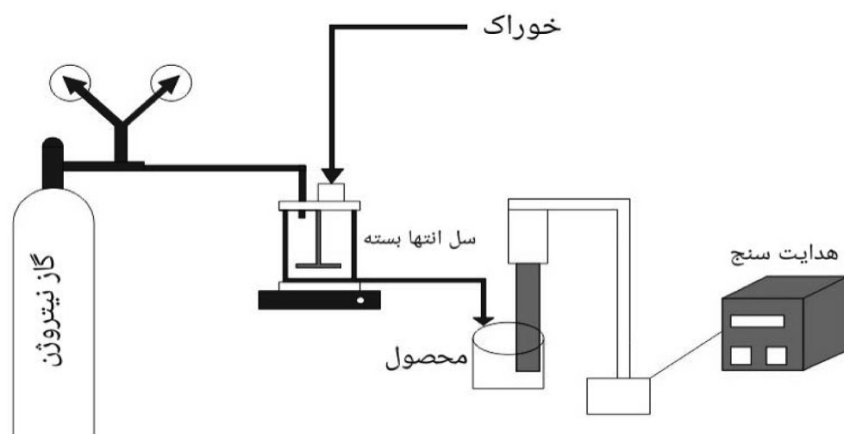
سپس جهت پراکندگی بهتر نانوذرات محلول‌ها به مدت ۴۰ min درون دستگاه اولتراسونیک قرار گرفتند. دستگاه اولتراسونیک منجر به پراکندگی یکنواخت نانوذرات و مانع تشکیل پدیده کلوخگی و تجمع نانوذرات در محلول‌های فوق می‌شود. برای خروج حباب‌های هوا از داخل محلول به مدت ۱۲ h در دمای اتاق نگهداری شدند. در مرحله بعد، محلول‌های یکنواخت حاوی نانوذرات توسط یک فیلم کش دستی (ضخامت  $300 \mu\text{m}$ ، ساخت ایران) روی یک صفحه شیشه‌ای تمیز و خشک با سرعت یکسان و پیوسته پخش کرده و سپس بلافاصله به یک حمام آب بدون یون در دمای اتاق انتقال و غوطه‌ور شدند. در این مرحله، حلال دی‌متیل استامید توسط آب به عنوان غیرحلال خارج می‌شود و این عمل باعث شکل‌گیری غشاء می‌گردد. سپس غشاها با آب بدون یون شسته شده و برای اطمینان از خارج شدن حلال و مواد محلول در آب به مدت ۲۴ h در داخل ظرف حاوی آب بدون یون قرار گرفتند. غشاهای ساخته شده بین دو صفحه کاغذ صافی به مدت ۲۴ h در هوای اتاق قرار داده شدند تا به‌طور کامل خشک شوند.

#### ارزیابی غشاها و نانوذرات

جهت شناسایی گروه‌های عاملی موجود در غشاء و نانوذره مس (I) اکسید، طیف‌سنجی مادون قرمز تبدیل فوریه با دستگاه اسپکترومتر انجام شد. از رابطه ۱ برای محاسبه درصد تخلخل و از رابطه ۲ برای محاسبه مقدار اندازه حفرات استفاده شد:

$$\varepsilon(\%) \equiv \frac{W_w - W_d}{\rho_f V_m} \times 100 \quad (1)$$

1. Dead-end Cell



شکل ۲ شماتیک سیستم فیلتراسیون غشایی

است. آنالیز طیف‌سنجی مادون قرمز در محدوده  $4000-400 \text{ cm}^{-1}$  انجام گرفت. پیک‌های مشخص شده در محدوده  $600-500 \text{ cm}^{-1}$  مربوط به ارتعاشات اکسید فلزی است [۳۳ و ۳۴]. همچنین، باندهای مشخص شده در  $828/07$  و  $621/35 \text{ cm}^{-1}$  مربوط به ارتعاشات کششی  $\text{Cu-O}$  و  $\text{Cu-O-Cu}$  است [۱۲ و ۱۳]. باندهای مشخص شده در  $1166/67 \text{ cm}^{-1}$  مربوط به کشش متقارن در گروه  $\text{S=O}$  و  $1229/75 \text{ cm}^{-1}$  برای کشش غیرمتقارن در گروه  $\text{S=O}$  است [۳۵]. پیک گسترده در محدوده  $1579/68-1487/15 \text{ cm}^{-1}$  مربوط به حلقه بنزنی در غشای پلی‌اترسلوفونی است [۳۶]. نانوذرات و غشاء پیک‌های جذب گسترده‌ای در محدوده  $3068/77-3096/35 \text{ cm}^{-1}$  دارند که به گروه‌های عاملی هیدروکسیل گروه کششی  $\text{O-H}$  تعلق دارد که می‌تواند به دلیل ترکیب نانوذرات در ساختار غشاء باشد. در شکل ۴ تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی به منظور بررسی مورفولوژی و پراکندگی نانوذرات، گرفته شد. بر طبق تصاویر نمونه‌های غشایی شامل یک ساختار نامتقارن با یک لایه بالایی جداساز متراکم و یک زیرلایه نگهدارنده متخلخل هستند [۳۷]. براساس نتایج آنالیز طیف‌سنجی مادون قرمز، نانوذره مس (I) اکسید به دلیل وجود اکسیژن در ساختار خود جزء نانو-ذرات آبدوست هستند.

در ابتدا غشاها را به صورت دایره‌ای شکل با قطری برابر قطر خارجی ماژول برش زده و به صورتی درون غشاء قرار می‌دهیم که سطح جداساز در تماس با خوراک ورودی قرار بگیرد. غشاها به مدت  $15 \text{ min}$  با فشار  $5 \text{ bar}$  تحت عمل فشرده‌سازی قرار گرفتند. سپس، فشار عملیاتی برای فرآیندهای جداسازی به میزان  $4/5 \text{ bar}$  تغییر داده شد. شار آب خالص از رابطه ۳ محاسبه شد:

$$J_w, l \equiv \frac{V}{A \times t} \quad (3)$$

در رابطه فوق  $V$  و  $A$  به ترتیب شار ماده عبوری از غشاء برحسب  $L$ ، مساحت سطح مقطع غشاء برحسب  $m^2$ ، زمان جداسازی برحسب  $h$  است. رابطه ۴ برای اندازه‌گیری میزان جداسازی استفاده شد [۲۹-۳۲]:

$$\text{Rejection (\%)} \equiv \frac{C_f - C_p}{C_f} \times 100 \quad (4)$$

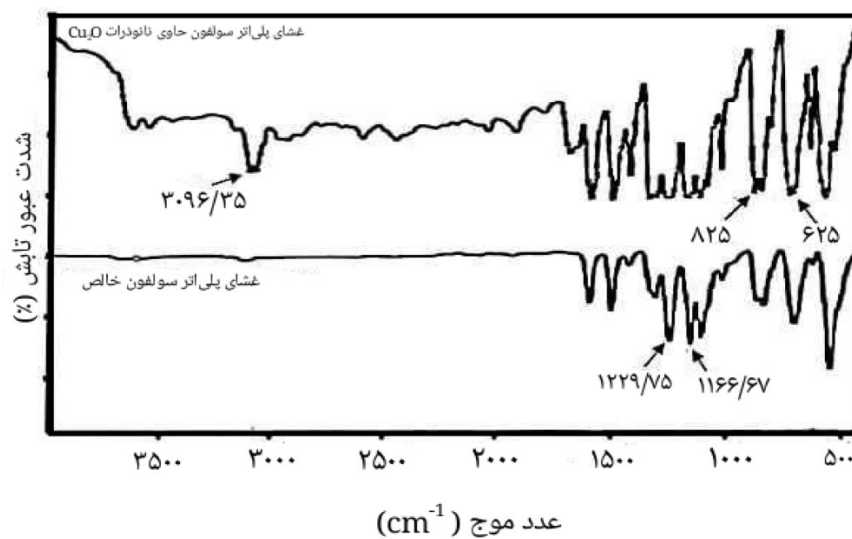
$C_f$  غلظت یون‌ها در خوراک و  $C_p$  غلظت محلول عبوری از غشاء است. محلول کلرید منیزیم با غلظت  $0/05 \text{ g/L}$  به عنوان محلول خوراک برای بررسی عملکرد غشاها تهیه شده استفاده شد.

## بحث و نتایج

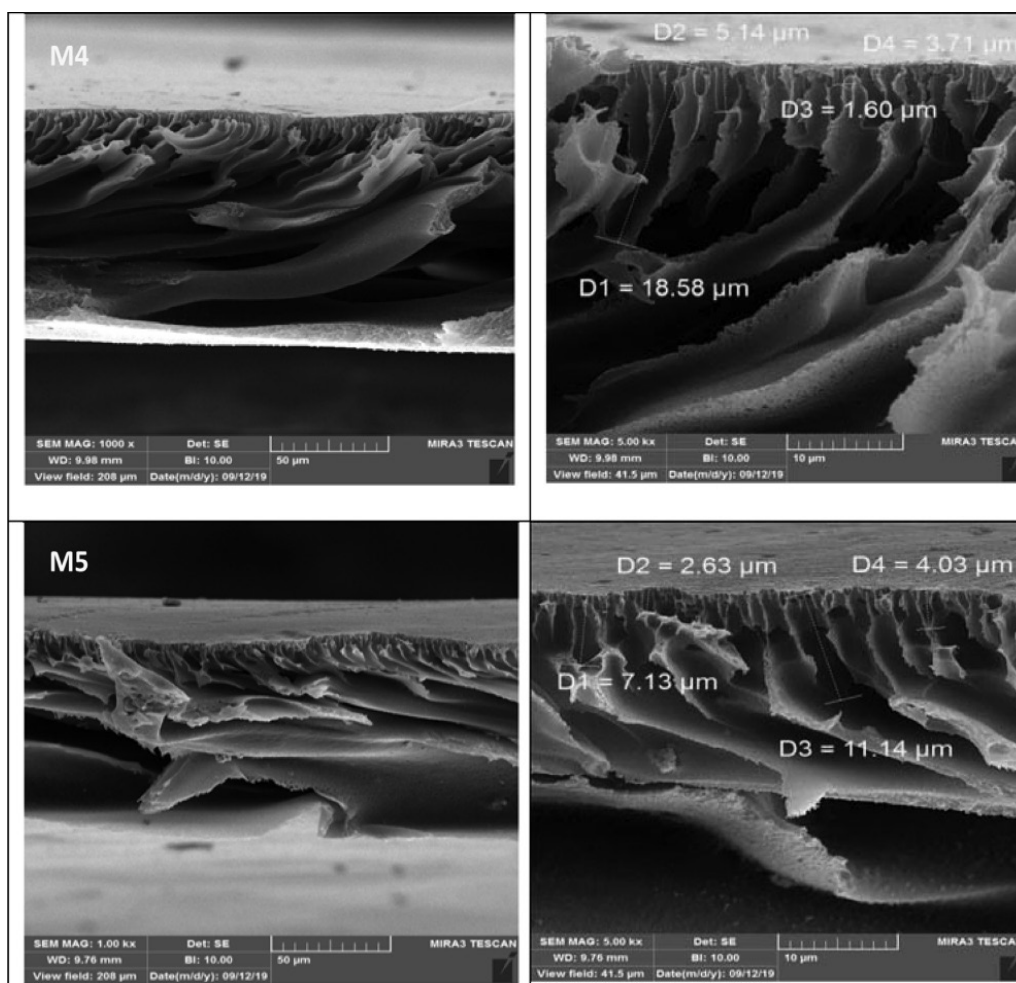
### مشخصات غشاء

نتایج آنالیز طیف‌سنجی مادون قرمز برای غشاها ساختار شده در شکل ۳ نشان داده شده

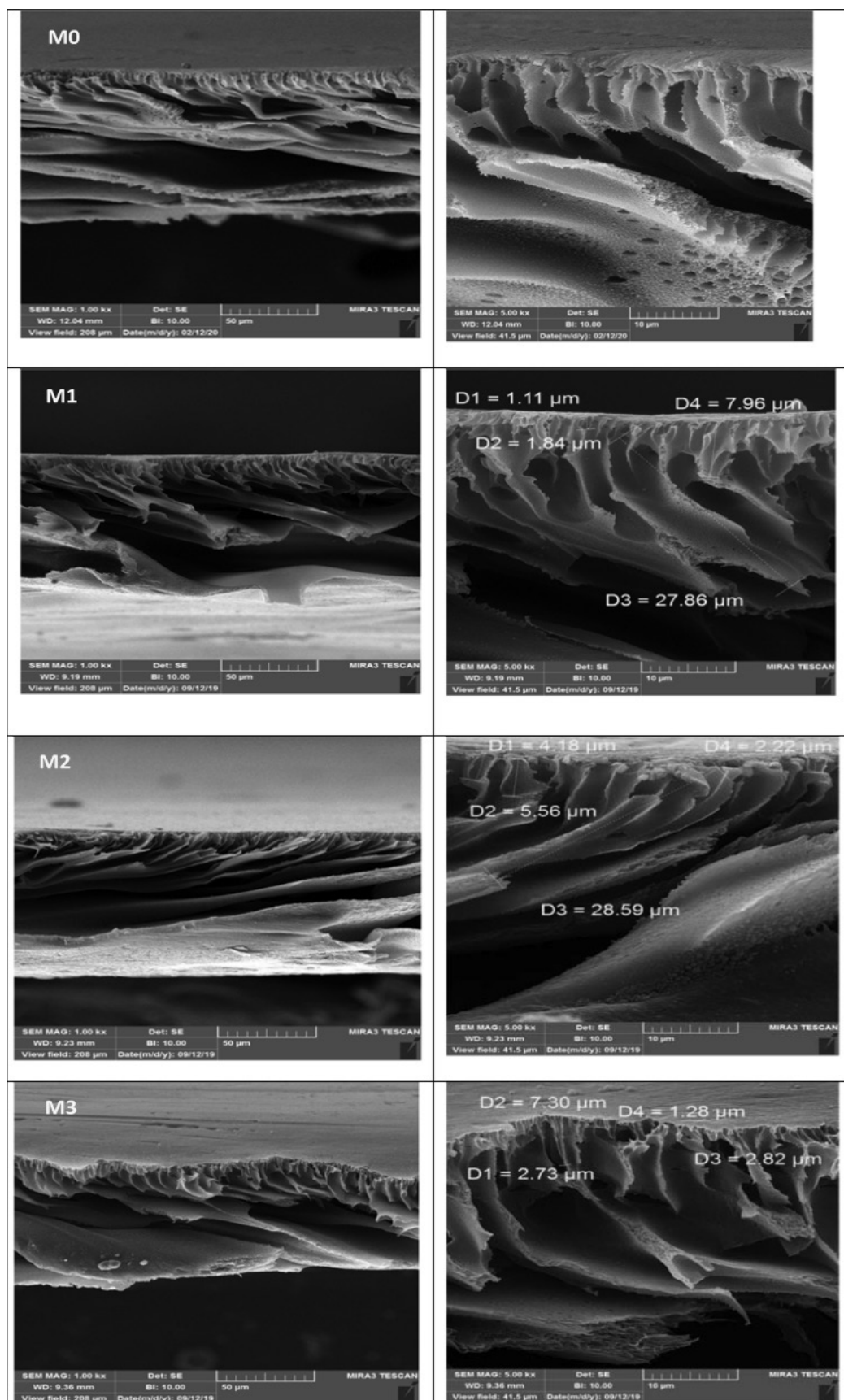




شکل ۳ FTIR از غشای پلی اترسولفون خالص و حاوی نانوذرات مس (I) اکسید



شکل ۴ ادامه در صفحه بعد



شکل ۴ آنالیز FESEM از مقطع عرضی غشاهای ساخته شده خالص (M0) و غشاهای محتوی ۰/۵ (M1)، ۰/۱۰ (M2)، ۰/۵۰ (M3)، ۱ (M4) و ۲ (M5) درصد وزنی نانوذرات مس (I) اکسید

شده و می‌تواند باعث ایجاد پدیده پرشدن حفرات گردد. در نتیجه می‌تواند اثر منفی بر شار عبوری از غشاء بگذارد که این علت کاهش شار در غشاها می‌باشد [۴۱ و ۴۲]. کاهش تخلخل در غشاهای M4 و M5 می‌تواند به دلیل انباشت نانوذرات و پراکندگی کم آن‌ها در غلظت‌های بالا باشد [۳۸].

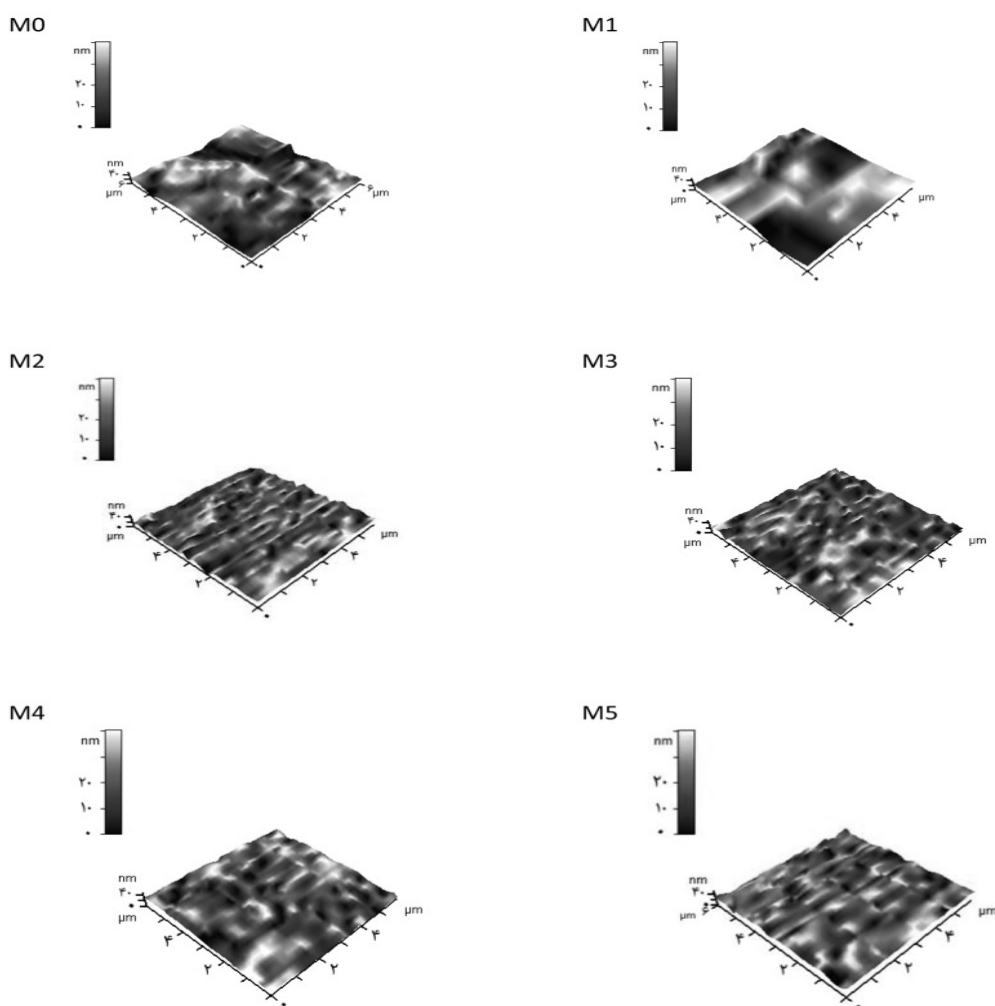
#### زبری سطح غشاهای ساخته شده

برای بررسی بیشتر مورفولوژی سطح، از غشاها آنالیز زبری سطح با استفاده از تصاویر سه بعدی سطح انجام گرفت که در شکل ۵ نشان داده شده‌اند. پارامترهای زبری از جمله میانگین زبری ( $R_a$ ) و میانگین مربعات ریشه ( $R_q$ ) غشاها و ماکزیمم زبری ( $R_{max}$ ) اندازه‌گیری شد که در جدول ۲ ارائه شده است. هرچه سطح غشا صاف‌تر باشد غشا آب‌دوست‌تر است اما هرچه سطح غشا زبرتر باشد تمایل بیشتری به رسوب ذرات موجود در خوراک دارد که در پستی و بلندی‌های موجود در سطح تجمع کرده و باعث ایجاد گرفتگی در سطح غشا می‌شوند و میزان شار عبوری را کاهش می‌دهند [۱ و ۱۱]. همان‌گونه که در شکل ۵ مشاهده می‌شود با افزودن نانوذرات در ساختار غشا میزان زبری سطح کاهش یافته و سطح غشاهای حاوی نانوذرات نسبت به غشای خالص صاف‌تر شده است. در M1 با ۰/۰۵٪ وزنی نانوذرات، میزان زبری سطح غشا کاهش یافته است بنابراین، غشا آب‌دوست‌تر شده است. در M2 با ۰/۱٪ وزنی میزان زبری به مقدار کمی افزایش یافته که می‌تواند به دلیل وجود نانوذرات در سطح و حرکت و تجمع آن‌ها در حین فرآیند تغییر فاز باشد. در M3 و M4 می‌توان گفت توزیع یکنواخت نانوذرات در سطح به گونه‌ای است که نانوذرات حفره‌های سطح را پر کرده و سطح را صاف‌تر کرده‌اند [۱۱]. زبری سطح در M5 مجدداً افزایش می‌یابد. در نمونه‌های غشایی که غلظت نانوذرات در آن‌ها بالا است.

با حضور این نانوذرات در ساختار غشایی در حین فرآیند ساخت غشاء، میزان نفوذ جریان غیرحلال در فیلم پلیمری و خروج حلال افزایش می‌یابد. از این‌رو، باعث افزایش سرعت جدایش فازی می‌گردد. در نتیجه، حلال با سرعت بیشتری از فیلم پلیمری خارج می‌شود و زمان جدایش فازی محلول قالب‌گیری شده در داخل حمام آب، به شدت کاهش می‌یابد که اصطلاحاً به آن جدایش فازی آنی می‌گویند. سپس با خروج سریع حلال، لایه فعال بالایی غشاء به سرعت شکل می‌گیرد و منجر به یک مقاومت اضافی در برابر انتقال جرم می‌گردد و به دنبال آن زمان تبادل بین حلال و غیرحلال در زیرلایه غشاء افزایش می‌یابد و به همین دلیل، حفرات در زیرلایه از حالت اسفنجی<sup>۱</sup> به ساختار انگشتی<sup>۲</sup> تبدیل می‌شوند [۳۸ و ۳۹]. علاوه بر این، این امر باعث ایجاد حفرات در ساختار غشاء و در نتیجه افزایش تخلخل می‌شود [۴۰]. به‌طور کلی، افزودن نانوذرات باعث افزایش تخلخل و همچنین تغییر در شکل و اندازه حفرات لایه نگهدارنده شده است. با توجه به شکل ۴ با افزودن نانوذرات حفرات بزرگ‌تر و طولی‌تری در ساختار غشاء پدید آمده‌اند. همچنین حفرات در لایه جداساز تا غشای M3 نسبت به غشای خالص بزرگ‌تر شده‌اند. با افزایش غلظت نانوذرات در غشاهای M4 و M5 اندازه حفرات کاهش یافته است که می‌تواند به علت تجمع و کلوخگی‌هایی باشد که بر روی سطح غشاء اتفاق می‌افتد، که این امر می‌تواند ناشی از عدم پراکندگی یکنواخت نانوذرات در محلول پلیمری در هنگام قرار گرفتن در حمام اولتراسونیک باشد. همچنین، غلظت بالای نانوذرات منجر به افزایش فعل و انفعالات آن‌ها می‌شود در نتیجه نانوذرات به‌صورت یکنواخت پخش نشده و تجمع پیدا می‌کنند یا دلیل دیگر آن می‌تواند حرکت نانوذره‌ها به سمت سطح غشاء در حین فرآیند تغییر فاز باشد زیرا مقادیر اضافی از نانوذرات منجر به کاهش مسیر عبور آب و نمک

1. Sponge-like

2. Finger-like



شکل ۵ عکس‌های میکروسکوپ نیروی اتمی از سطح غشاهای خالص و حاوی غلظت‌های مختلفی از نانوذرات مس (I) اکسید.

جدول ۲ مقدار پارامترهای زبری غشاهای ساخته شده.

شماره غشا	$R_a$ (nm)	$R_q$ (nm)	$R_{max}$ (nm)
M0	۴/۶۲	۵/۵۹	۲۳/۸
M1	۴/۲۶	۵/۰۷	۱۶/۹
M2	۴/۴۸	۳/۷۷	۲۷/۱۶
M3	۳/۷۸	۴/۵۴	۱۸/۴۶
M4	۲/۳۵	۳/۰۲	۱۳/۶۱
M5	۳/۰۲	۴/۰۵	۲۰/۷۱

باشد.

#### عملکرد فیلتراسیون غشاها

عملکرد فیلتراسیون غشاها وابسته به ساختار و آب‌دوستی غشاها است. **جدول ۳** نشان‌دهنده روند تغییرات شار آب خالص عبوری از غشا می‌باشد.

همان‌طور که گفته شد در هنگام فرآیند تغییر فاز، مقدار زیادی از نانوذرات به سمت سطح غشا حرکت کرده و در آنجا تجمع می‌کنند. به همین علت افزایش زبری سطح در M5 می‌تواند ناشی از کلوخگی و تجمع و انباشت ذرات روی سطح غشا

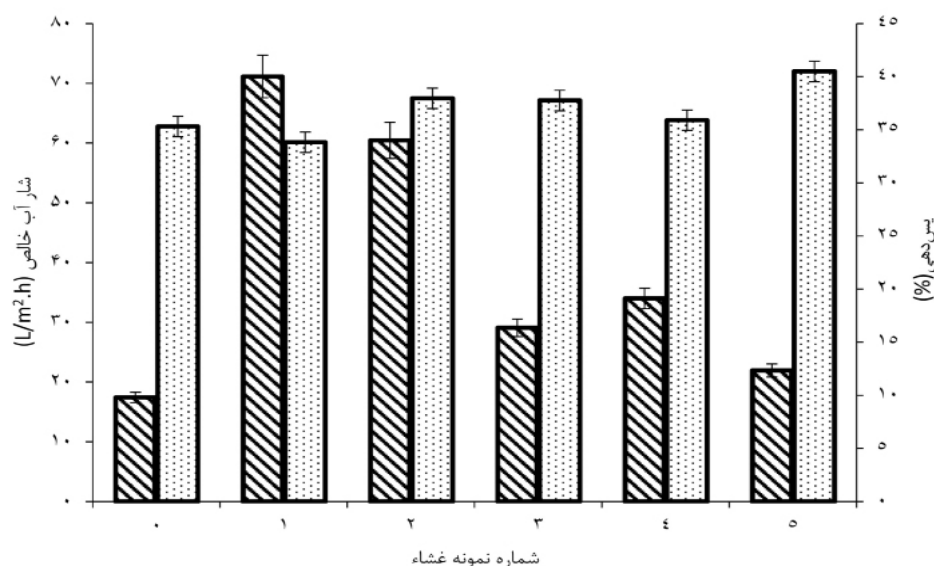
جدول ۳ نتایج شار آب خالص غشاهای ساخته شده.

شماره غشاء	M0	M1	M2	M3	M4	M5
شار آب خالص (نماد واحد)	۹/۸	۳۶/۷۸	۲۹/۴۹	۱۳/۷	۱۴/۶۱	۱۱/۷۵

همان گونه که مشخص است میزان شار آب خالص غشاهای حاوی نانوذرات نسبت به غشای خالص افزایش یافته که می توان گفت با افزودن نانوذرات میزان آب دوستی غشاء افزایش یافته که این سبب جذب آب و افزایش انرژی برهم کنش بین آب و غشاء و بهبود ترشوندگی می شود. همچنین، میزان تخلخل غشاء نیز با افزایش غلظت نانوذرات افزایش یافت و به مقدار (۵۴٪-۷۸٪) رسید در حالی که مقدار آن ۵۲٪ برای غشای خالص بود [۴۳]. همچنین، تشکیل کانال های طویل و بزرگ نیز عامل دیگر بهبود شار آب خالص است [۴۴]. اما با افزایش غلظت نانوذرات میزان شار عبوری از غشاها کاهش یافت که می تواند به علت انسداد حفرات موجود در سطح غشاء در نتیجه پراکنده شدن نامناسب نانوذرات در سطح غشاء و کاهش سایز حفرات موجود در سطح غشاء باشد. دلیل دیگر نیز ممکن است گرفتگی حفرات توسط انباشت و کلوخگی نانو ذرات روی سطح غشاء و در ساختمان غشایی باشد که در این شرایط سطح فعال نانو ذرات کاهش می یابد [۴۵] و [۴۶]. در این شرایط کانال های انتقال مسدود شده و شار آب خالص را کاهش می دهد. همان طور که مشخص است، بیشترین شار عبوری آب خالص به مقدار ۳۶/۷۸ و ۲۹/۴۹ L/m<sup>2</sup>.h مربوط به غشاهای ساخته شده M1 و M2 است، که به ترتیب دارای حفرات بزرگتری به میزان ۸/۳۷×۱۰<sup>-۹</sup> m و ۶/۰۳×۱۰<sup>-۹</sup> m می باشند، که در مقایسه با سایر غشاهای ساخته شده توسط دیگران بهبود شار را به دنبال داشته است. شار عبوری و پس دهی نمک از مهم ترین ویژگی ها در تعیین عملکرد غشاها هستند. نتایج شار عبوری و پس دهی محلول نمکی MgCl<sub>2</sub> در شکل ۶ گزارش شده است. نتایج نشان می دهد کمترین میزان پس دهی نمک ها مربوط به غشای

M1 و بیشترین میزان پس دهی برای محلول نمکی مربوط به غشای M5 می باشد که می تواند به دلیل تشکیل کانال های بهم پیوسته و شار آب خالص کمتر باشد. میزان شار عبوری محلول MgCl<sub>2</sub> از ۹/۸۱ به ۱۲/۳۴ L/m<sup>2</sup>.h افزایش و پس دهی نمک از ۶۲/۷۸ به ۶۰/۱۴٪ برای غشای M1 نسبت به غشای خالص کاهش یافته است. این تغییرات به دلیل افزایش سایز حفرات است که منجر به افزایش شار و کاهش پس دهی می شود. میزان شار با افزایش غلظت نانوذرات کاهش یافته است که می تواند به علت کلوخگی و گرفتگی احتمالی غشاها با پر شدن حفرات توسط نانوذرات باشد. افزایش پس دهی در غلظت های بالا نانوذرات می تواند به دلایل زیر باشد: کاهش میانگین اندازه حفرات و اثر دوان بین یون ها با بار همنام با توجه به برهم کنش بین نانوذرات و غشاء. مس (I) اکسید با داشتن بارهای منفی ناشی از گروه عاملی هیدروکسیل باعث دفع یون های دوظرفیتی سولفات و تک ظرفیتی کلرید می شود. بنابراین، دافعه الکترواستاتیکی بین بارهای همنام منفی از سطح غشاء و یون کلرید (Cl<sup>-</sup>) یکی از مهم ترین دلایل جداسازی است [۳۷]. پس با افزایش غلظت مس (I) اکسید، بار منفی سطح غشاء افزایش یافته و میزان جداسازی و دفع الکترواستاتیکی یون های سولفات و کلرید افزایش می یابد [۴۷]. به طور کلی، همه غشاهای تهیه شده به جز M1 دارای پس دهی نمک بالاتری نسبت به غشای پلی اترسولفون خالص هستند و این به دلیل بار منفی سطح غشاء است. میزان بالای شار عبوری در غشاهای M1 و M2 به علت افزایش سایز حفرات آنها است [۴۲]. به طور کلی، اثر دوان و سازوکار جذب دو عامل مهم برای پس دهی محلول ها است.



شکل ۶ شار عبوری و پس‌دهی محلول نمک  $MgCl_2$ .

غشاء باعث توانایی بالاتر برای جذب یون‌ها مثبت و برخورد بیشتر یون‌های آب‌پوشی شده روی سطح غشاء می‌شود [۴۸ و ۴۹]. بنابراین افزایش اندازه حفرات، تخلخل و شار آب خالص بهبود یافته برای M1 ممکن است منجر به کاهش پس‌دهی یون‌های  $Mg^{2+}$  شده باشد [۵۰-۵۲]. مقایسه عملکرد جداسازی در این مطالعه با دیگر مقالات چاپ شده در جدول ۴ نشان می‌دهد که با توجه به فشار عملیاتی و مقدار نانوذرات استفاده شده، میزان فلاکس مناسبی از غشاهای محتوی نانوذرات اکسید مس تک ظرفیتی به‌دست می‌آید.

گروه‌های هیدروکسیل با بار منفی روی سطح غشاء یون‌های تک‌ظرفیتی کلرید را دفع می‌کند و پس‌دهی یون‌های  $Mg^{2+}$  را افزایش می‌دهند. غشای M5 بیشترین پس‌دهی و کمترین شار آب خالص را به دلیل کانال‌های بهم پیوسته و طولی با توجه به تصاویر SEM ارائه کرده است. با افزایش غلظت نانوذرات میزان پس‌دهی افزایش پیدا کرده است که می‌تواند به علت حضور نانوذرات روی سطح غشاء در هنگام تغییر فاز و افزایش ضخامت لایه فعال باشد که مقاومت غشاء در برابر انتقال یون افزایش می‌دهد. علاوه بر این، بارهای منفی آب‌دوست نانوذرات و افزایش رطوبت‌پذیری سطح

جدول ۴ مقایسه نتایج حاصل از این مطالعه با مقالات چاپ شده دیگر.

غشا	نانوذره	درصد وزنی نانوذره	فشار (bar)	فلاکس ( $L/m^2h$ )	رفرنس
پلی‌اترسولفون	گرافن اکساید	۰/۵	۵	۱۳/۹	[۵۱]
پلی‌اترسولفون	گرافن اکساید	۰/۰۷	۲۰	۹۹/۷	[۵۲]
پلی‌اترسولفون	$rGO/TiO_2$	۰/۱۵	۵	۴۵	[۵۳]
پلی‌اترسولفون	کربن نانوفایبر/کیتوسان	۰/۵	۵	۱۳/۵۸	[۵۴]
پلی‌اترسولفون	$Fe_3O_4/PVP$	۰/۵	۴/۵	۹/۹۶	[۵۵]
پلی‌اترسولفون	فریت کبالت/کربن اکتیو	۰/۱	۵	۱۳/۲	[۵۶]
مطالعه حاضر	اکسید مس تک ظرفیتی	۰/۰۵	۴/۵	۳۶/۷۸	-

## نتیجه گیری

دارای ۰.۵٪ وزنی نانوذره مس (I) اکسید و بالاترین پس دهی نمک توسط غشای M5 که دارای ۲٪ وزنی نانوذره مس (I) اکسید است، به دست آمد. شار آب خالص به دلیل وجود گروه های آب دوست و افزایش اندازه متوسط حفرات و تخلخل، افزایش یافت. همچنین افزایش پس دهی می تواند مربوط به ایجاد بیشتر سایت های فعال جذب کلرید منیزیم و وجود بار منفی برای دفع  $\text{Cl}^-$  باشد.

غشاهای نانوفیلتراسیون بر پایه پلی اترسولفون با استفاده از روش وارونگی فاز ساخته شدند و غلظت مختلفی از نانوذرات مس (I) اکسید که با روش الکتروشیمیایی سنتز شده بودند، در ساختار غشاء قرار گرفتند. حضور گروه های آب دوست نانوذرات باعث افزایش قابل توجهی در شار آب خالص شد. بیشترین شار آب خالص توسط غشای M1 که

## مراجع

- [1]. Bandehali S, Parvizian F, Ruan H, Moghadassi A, Shen J, Figoli A, Adeleye A S, Hilal N, Matsuura T, Drioli E (2021) A planned review on designing of high-performance nanocomposite nanofiltration membranes for pollutants removal from water, *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 78-125.
- [2]. Van der Bruggen B, Vandecasteele C (2003) Removal of pollutants from surface water and groundwater by nanofiltration: overview of possible applications in the drinking water industry, *Environmental pollution*, 435-445.
- [3]. Yaser A Z (2011) Development of integrated nanofiltration system for highly concentrated dye removal, Doctoral dissertation, Swansea University, 1-79.
- [4]. Staude E (1992) Marcel mulder: basic principles of membrane technology, kluwer Academic Publishers, Dordrecht, Boston, London, 96: 741-742.
- [5]. Mulder J (2012) Basic principles of membrane technology, Springer Science and Business Media.
- [6]. García A, Rodríguez B, Oztürk D, Rosales M, Diaz D, Mautner A (2018) Incorporation of CuO nanoparticles into thin-film composite reverse osmosis membranes (TFC-RO) for antibiofouling properties, *Polymer Bulletin*, 75: 2053-2069.
- [7]. Hosseini S, Afshari M, Fazlali A, Farahani S K, Bandehali S, Van der Bruggen B, Bagheripour E (2019) Mixed matrix PES-based nanofiltration membrane decorated by  $(\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-polyvinylpyrrolidone})$  composite nanoparticles with intensified antifouling and separation characteristics, *Chemical Engineering Research Design*, 147: 390-398.
- [8]. Hwang J, Ejsmont A, Freund R, Goscińska J, Schmidt B V, Wuttke S (2020) Controlling the morphology of metal-organic frameworks and porous carbon materials: Metal oxides as primary architecture-directing agents, *Chemical Society Reviews*, 3348-3422.
- [9]. Hashmi M, Ullah S, Kim I S (2019) Copper oxide (CuO) loaded polyacrylonitrile (PAN) nanofiber membranes for antimicrobial breath mask applications, *Current Research in Biotechnology*, 1-10.
- [10]. Zhou H, Kang L, Zhou M, Zhong Z, Xing W (2018) Membrane enhanced COD degradation of pulp wastewater using  $\text{Cu}_2\text{O}/\text{H}_2\text{O}_2$  heterogeneous Fenton process, *Chinese Journal of Chemical Engineering*, 26, 9: 1896-1903.
- [11]. Zareei F, Hosseini S M (2019) A new type of polyethersulfone based composite nanofiltration membrane decorated by cobalt ferrite-copper oxide nanoparticles with enhanced performance and antifouling property, *Separation Purification Technology*, 226: 48-58.
- [12]. Singh R, Yadav V, Purkait M K (2019) Cu2O photocatalyst modified antifouling polysulfone mixed matrix membrane for ultrafiltration of protein and visible light driven photocatalytic pharmaceutical removal, *Separation Purification Technology*, 212: 191-204.
- [13]. Xu Z, Ye S, Zhang G, Li W, Gao C, Shen C, Meng Q (2016) Antimicrobial polysulfone blended ultrafiltration membranes prepared with Ag/Cu<sub>2</sub>O hybrid nanowires, *Journal of Membrane Science*, 509: 83-93.
- [14]. Nasrollahi N, Vatanpour V, Aber S, Mahmoodi N M (2018) Preparation and characterization of a novel polyethersulfone (PES) ultrafiltration membrane modified with a CuO/ZnO nanocomposite to improve permeability and antifouling properties, *Separation and Purification Technology* 192: 369-382.
- [15]. Yang H, Ouyang J, Tang A, Xiao Y, Li X, Dong X, Yu Y (2006) Electrochemical synthesis and photocatalytic property of cuprous oxide nanoparticles, *Materials Research Bulletin*, 1310-1318.
- [16]. Valodkar M, Pal A, Thakore S (2011) Synthesis and characterization of cuprous oxide dendrites: New simplified green hydrothermal route, *Alloys Compounds*, 523-528.

- [17]. Khattar H K, Al-Hasnawi S W R, Al-Saady F A (2015) Electrolytic preparation and characterization of cuprous oxide nano powder, *International Journal of Electrical Computer Sciences IJECS-IJENS*, 6-12.
- [18]. Sachin S S, Ashok D B, Chandrashekhar M M (2016) Synthesis of cuprous oxide (Cu<sub>2</sub>O) nanoparticles—a review, *Journal Of Nano- And Electronic Physics*, 8, (8, № 1): 01035-1-01035-5.
- [19]. Saeednia S, Iranmanesh P, Hatefi A M, Sinaei S (2015) Synthesis of cuprous oxide by thermal treatment in liquid paraffin. nanostructures, 5, 3: 297-303.
- [20]. Ji J, Cooper W (1990) Electrochemical preparation of cuprous oxide powder: Part I. Basic electrochemistry, *Journal of Applied Electrochemistry*, 20, 5: 818-825.
- [21]. Zhang N, Du Y L, Zhang Y, Wang C M (2011) A simple method for controlling the type of cuprous oxide semiconductors using different surfactants, *Journal of Materials Chemistry*, 21, 14: 5408-5413.
- [22]. Valodkar M, Pal A, Thakore S (2011) Synthesis and characterization of cuprous oxide dendrites: New simplified green hydrothermal route, *Alloys Compounds*, 509, 2: 523-528.
- [23]. Sandhya S U, Nityananda S A (2013) A facile one step solution route to synthesize cuprous oxide nanofluid, *Nanomaterials Nanotechnology*, 3: 5.
- [24]. Ji J, Cooper W C (1990) Electrochemical preparation of cuprous oxide powder: Part II. Process conditions, *Journal of Applied Electrochemistry*, 20, 5: 826-834.
- [25]. Hwang G J, Ohya H, Nagai T (1999) Ion exchange membrane based on block copolymers, Part III: preparation of cation exchange membrane, *Membrane Science*, 156, 1: 61-65.
- [26]. Khan J, Tripathi B P, Saxena A, Shahi V K (2007) Electrochemical membrane reactor: In situ separation and recovery of chromic acid and metal ions, *Electrochimica Acta*, 52, 24: 6719-6727.
- [27]. Ghaemi N, Madaeni S S, Daraei P, Rajabi H, Shojaeimehr T, Rahimpour F, Shirvani B (2015) PES mixed matrix nanofiltration membrane embedded with polymer wrapped MWCNT: Fabrication and performance optimization in dye removal by RSM, *Journal of Hazardous Materials*, 298: 111-121.
- [28]. Safarpour M, Vatanpour V, Khataee A (2016) Preparation and characterization of graphene oxide/TiO<sub>2</sub> blended PES nanofiltration membrane with improved antifouling and separation performance, *Desalination*, 393: 65-78.
- [29]. Hu, L., et al., 2012. Preparation and performance of novel thermally stable polyamide/PPENK composite nanofiltration membranes. *Applied Surface Science*, 258(22): pp. 9047-9053.
- [30]. Sivakumar, M., et al., 1998. Modification of cellulose acetate: Its characterization and application as an ultrafiltration membrane. *applied polymer science*, 67(11): pp. 1939-1946.
- [31]. Gholami A, Moghadassi A R, Hosseini S M, Shabani S, Gholami F (2014) Preparation and characterization of polyvinyl chloride based nanocomposite nanofiltration-membrane modified by iron oxide nanoparticles for lead removal from water, *Industrial Engineering Chemistry*, 20, 4: 1517-1522.
- [32]. Rajesh S, Senthilkumar S, Jayalakshmi A, Nirmala M T, Ismail A F, Mohan D (2013) Preparation and performance evaluation of poly (amide-imide) and TiO<sub>2</sub> nanoparticles impregnated polysulfone nanofiltration membranes in the removal of humic substances, *Colloids Surfaces A: Physicochemical Engineering Aspects*, 418: 92-104.
- [33]. Chang X, Wang Z, Quan S, Xu Y, Jiang Z, Shao L (2014) Exploring the synergetic effects of graphene oxide (GO) and polyvinylpyrrolidone (PVP) on poly (vinylidene fluoride)(PVDF) ultrafiltration membrane performance, *Applied Surface Science*, 316: 537-548.
- [34]. Nasrollahi N, Atanpour V, Aber S, Mahmoodi N M (2017) Preparation and characterization of a novel polyethersulfone (PES) ultrafiltration membrane modified with a CuO/ZnO nanocomposite to improve permeability and antifouling properties, *Separation and Purification Technology*, 192: 369-382.
- [35]. Abdul Mannan H, Mukhtar H, Shima Shaharun M, Roslee Othman M, Murugesan T (2016) Polysulfone/poly (ether sulfone) blended membranes for CO<sub>2</sub> separation, *Journal of Applied Polymer Science*, 133: 5.
- [36]. Bandehali S, Parvizian F, Moghadassi A, Hosseini S M (2019) High water permeable PEI nanofiltration membrane modified by L-cysteine functionalized POSS nanoparticles with promoted antifouling/separation performance, *Separation Purification Technology*, 237: 116361.
- [37]. Bagheripour E, Moghadassi A, Hosseini S M (2016) Preparation of mixed matrix PES-based nanofiltration membrane filled with PANI-co-MWCNT composite nanoparticles, *Korean Journal of Chemical Engineering*, 33, 4: 1462-1471.
- [38]. Bandehali S, Moghadassi A, Parvizian F, Hosseini S (2019) A new type of [PEI-glycidyl POSS] nanofiltration membrane with enhanced separation and antifouling performance, *Korean Journal of Chemical Engineering*, 36, 10: 1657-1668.
- [39]. Mansourpanah Y, Madaeni S S, Rahimpour A, Adeli M, Hashemi M Y, Moradian M R (2011) Fabrication new PES-based mixed matrix nanocomposite membranes using polycaprolactone modified carbon nanotubes as the additive: property changes and morphological studies, *Desalination*, 277, 1-3: 171-177.

- [40]. Sivakumar M, Mohan D R, Rangarajan R (2006) Studies on cellulose acetate-polysulfone ultrafiltration membranes: II. Effect of additive concentration, *Membrane Science*, 268, 2: 208-219.
- [41]. Hosseini S, Afshari M, Fazlali A R, Farahani S K, Bandehali S, Van der Bruggen B, Bagheripour E (2019) Mixed matrix PES-based nanofiltration membrane decorated by (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-polyvinylpyrrolidone) composite nanoparticles with intensified antifouling and separation characteristics, *Chemical Engineering Research Design*, 147: 390-398.
- [42]. Bagheripour E, Moghadassi A R, Hosseini S M, Van der Bruggen B, Parvizian F (2018) Novel composite graphene oxide/chitosan nanoplates incorporated into PES based nanofiltration membrane: chromium removal and antifouling enhancement, *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 62: 311-320.
- [43]. Sianipar M, Kim S H, Iskandar F, Wenten I G (2017) Functionalized carbon nanotube (CNT) membrane: progress and challenges, *RSC Advances*, 7, 81: 51175-51198.
- [44]. Ghaemi N, Madaeni S S, Alizadeh A, Rajabi H, Daraei P (2011) Preparation, characterization and performance of polyethersulfone/organically modified montmorillonite nanocomposite membranes in removal of pesticides, *Journal of Membrane Science*, 382, 1-2: 135-147.
- [45]. He Y, Tang Y P, Chung T S (2016) Concurrent removal of selenium and arsenic from water using polyhedral oligomeric silsesquioxane (POSS)-polyamide thin-film nanocomposite nanofiltration membranes, *Industrial Engineering Chemistry Research*, 55, 50: 12929-12938.
- [46]. Zhao Y, Yuan Q (2006) A comparison of nanofiltration with aqueous and organic solvents, *Journal of membrane Science*, 279, 1-2: 453-458.
- [47]. Ghaemi N, Madaeni S S, Alizadeh A, Daraei P, Vatanpour V, Falsafi M (2012) Fabrication of cellulose acetate/sodium dodecyl sulfate nanofiltration membrane: characterization and performance in rejection of pesticides, *Desalination*, 290: 99-106.
- [48]. Gueye M, Richardson Y, Kafack F T, Blin J (2014) High efficiency activated carbons from African biomass residues for the removal of chromium (VI) from wastewater, *Environmental Chemical Engineering*, 2, 1: 273-281.
- [49]. Hosseini S, Ebrahimi M, Khodabakhshi A, Nemati M, Askari M (2019) Fabrication of mixed matrix ion exchange membrane by using activated carbon nanoparticles modified by chitosan: investigation of electrolyte concentration and pH effects on transfer properties, *Journal of Petroleum Research*, 29, 98-2: 72-83.
- [50]. Fan L, Luo C, Sun M, Li X, Qiu H (2013) Highly selective adsorption of lead ions by water-dispersible magnetic chitosan/graphene oxide composites, *Colloids Surfaces B: Biointerfaces*, 103: 523-529.
- [51]. Kyzas G Z, Kostoglou M, Lazaridis N K (2009) Copper and chromium (VI) removal by chitosan derivatives—Equilibrium and kinetic studies, *Chemical Engineering Journal*, 152, 2-3: 440-448.
- [52]. Bandehali S, Moghadassi A, Parvizian F, Hosseini S M (2020) Improvement in separation performance of PEI-based nanofiltration membrane by using functionalized titanium dioxide nanoparticles, *Journal of Petroleum Research*, 29, 109: 108-119.

# بررسی اثرات مقیاس pH و امواج فراصوت بر پایداری نانوذرات مس اکسید در فرآیند جوشش استخری

محسن خوشه‌چین<sup>۱</sup>، سهراب فتحی<sup>۲</sup>، فرهاد سلیمی<sup>۱\*</sup> و اکبر محمدی دوست<sup>۱\*</sup>

۱- گروه مهندسی شیمی، واحد کرمانشاه، دانشگاه آزاد اسلامی، کرمانشاه، ایران

۲- گروه مهندسی شیمی، دانشکده انرژی، دانشگاه صنعتی کرمانشاه، کرمانشاه، ایران

تاریخ دریافت: ۱۴۰۰/۱۰/۲۱ تاریخ پذیرش: ۱۴۰۱/۰۴/۱۲

## چکیده

در این پژوهش آزمایشگاهی به بررسی افزایش ضریب انتقال حرارت در جوشش استخری نانوسیال با ذرات مس اکسید (CuO) با استفاده از روش‌های تغییر pH و امواج فراصوت پرداخته شده است. نانوذرات موجب افزایش ضریب انتقال حرارت سیال پایه در فرآیند جوشش شده اما این مواد به علت عدم پایداری با افزایش دما و زمان، موجب رسوب بر سطح گرم‌کن و در نهایت موجب کاهش ضریب انتقال حرارت می‌شوند. در نتیجه لازم است که غلظت بهینه نانوذرات در سیال به دست آید تا کمترین مقدار رسوبات تشکیل شود. بنابراین استفاده از روش‌هایی که منجر به کاهش رسوب نانوذرات بر روی سطح شوند، مانند افزایش پایداری نانوذرات و استفاده از غلظت بهینه، می‌تواند ضریب انتقال حرارت را افزایش دهد. در این کار از دو روش پایداری نانوذرات در محلول یعنی تغییر pH (۹/۵، ۱۰ و ۱۰/۵) و تابش امواج فراصوت (با توان‌های ۲۵، ۵۰ و ۷۵٪ از توان دستگاه فراصوت (۱/۲ kW)) استفاده شده است. نتایج کار به خوبی نشان داد که در غلظت ۰/۱۲۵ wt.٪ از محلول نانوسیال، بیشترین مقدار ضریب انتقال حرارت با تابش امواج فراصوت (۵۰٪ توان) برابر ۳۷/۴۸٪ و در تغییر اسیدیته محلول (pH=۱۰) برابر با ۲۲/۶۸٪ حاصل شد.

**کلمات کلیدی:** نانوذرات، ضریب انتقال حرارت جوشش، امواج فراصوت، pH، رسوب

## مقدمه

و با صرفه اقتصادی جلب شده است. فرآیندهای تغییر فاز در انتقال حرارت یکی از روش‌های مؤثر در انتقال انرژی هستند که در آن انرژی با شار حرارت بالا و در قالب فرآیند تغییر فاز مایع به بخار و بالعکس رخ می‌دهد [۱]. فرآیند جوشش استخری با تغییر فاز قادر به انتقال شارهای حرارتی خیلی کم تا شارهای بسیار زیاد است.

به علت وجود بحران انرژی (در تولید از منابع) در سراسر جهان، توجه بیشتری به سمت صرفه‌جویی در تولید و تبدیل انرژی به سایر انرژی‌های کارآمد

\*مسئول مکاتبات  
آدرس الکترونیکی  
Ak.Mohammadidoust@iau.ac.ir  
f.salimi@iauuksh.ac.ir  
شناسه دیجیتال: (DOI:10.22078/PR.2022.4710.3114)



و ته‌نشینی را کاهش می‌دهند، اما جز لاینفک در کاهش هدایت حرارتی نانوسیال است. برخی از محققین تأکید دارند که تجمع ذرات و تشکیل خوشه‌های<sup>۴</sup> نانوذرات باعث کاهش در پایداری نانوسیال می‌شوند [۱۲ و ۱۳]. مادامی که در فرآیند جوشش، تبخیر در میکرو لایه‌ها باعث حفظ و ادامه فرآیند می‌شود، غلظت نانوذرات در این نواحی و پس از جدا شدن هر حباب از سطح، افزایش یافته و موجب رسوب سریع نانوذرات بر روی سطح انتقال حرارت می‌شود. این سازوکار باعث می‌شود تشکیل رسوب در فرآیند جوشش اجتناب‌ناپذیر باشد [۱۴]. هدایت حرارتی نانوسیال‌ها تابع فاکتورهایی مانند شکل، اندازه و پایداری نانوذرات، نوع سیال پایه استفاده شده، غلظت نانوذرات و دمای محلول است [۱۵]. روش‌های متداول برای پایداری نانوسیالات شامل افزودن سورفکتانت، تغییر pH محلول و تابش امواج فراصوت هستند [۱۶]. پراکندگی مناسب نانوذرات در سوسپانسیون را می‌توان با افزایش چگالی بار سطحی (جهت تولید نیروهای دافعه قوی) به‌دست آورد. به‌طور کلی، نانوسیال نباید در نقطه ایزوالکتریک (IEP) قرار داشته باشد. نقطه ایزوالکتریک نقطه‌ای است که در آن مولکول یا ذره دارای بار الکتریکی سطحی خالصی نباشد. در این حالت، پدیده‌های الکتروسینتیکی از بین می‌روند. در صنعت هر دو روش تغییر pH محلول و افزودن سورفکتانت برای دور شدن از نقطه ایزوالکتریک به‌کار می‌برند. براساس نظریه Derjaguin– Landau– Verwey– Overbeek [۱۷]، کنترل کردن pH در محلول یک روش مناسب برای پراکندگی نانوذرات در محلول است. زمانی که pH مساوی یا نزدیک به نقطه IEP است، نانوذرات تمایل به ناپایداری دارند و در نتیجه خوشه‌هایی از ذرات تشکیل و رسوب می‌کنند.

فرآیند جوشش استخری، در تجهیزات صنعتی مانند راکتورهای هسته‌ای، تراشه‌های الکترونیکی، دیگ‌های بخار و غیره، که در آن‌ها دستیابی به بالاترین میزان انتقال حرارت از اهمیت زیادی برخوردار است، نقش اساسی دارد [۲]. به‌طور کلی، دو روش برای افزایش کارایی در انتقال حرارت وجود داد که شامل روش‌های فعال و غیرفعال می‌باشند. در روش‌های فعال نیازمند یک نیروی خارجی مانند ارتعاشات مکانیکی [۳]، الکتروهیدرودینامیک (EHD) [۴] و امواج فراصوت [۵] است. روش‌های غیرفعال نیز شامل تکنیک‌هایی می‌شود که درون محلول و سیستم (بعد از شروع فرآیند) نمی‌توان بر فرآیند تغییر اعمال کرد) انجام می‌گیرد که شامل نوع محلول، جنس و هندسه سطح هستند. این تکنیک‌ها مانند نانوسیال [۶]، دستگاه‌های جریان چرخشی<sup>۲</sup> [۷] و سطوح افزایش یافته [۸] می‌باشند. با توجه به هدایت حرارتی بالای نانوذره، اکثر نتایج نشان می‌دهند که نانوذرات می‌توانند عملکرد انتقال حرارت را در مایعات به‌طور چشم‌گیری افزایش دهند [۹]. اما نکته مهم در مورد افزودن نانوذرات فلزی، افزایش ویسکوزیته مایعات است که موجب افزایش هزینه‌های پمپاژ شده، و از طرفی نانوذرات به‌شدت تمایل به ته‌نشینی داشته که موجب کاهش میزان ضریب انتقال حرارت می‌شود. نانوذرات متداول در صنعت و آزمایشگاه‌ها شامل آلومینیوم اکسید ( $Al_2O_3$ )، مس (Cu)، مس اکسید (CuO)، کاربیدسیلیکون (SiC)، کاربیدتیتانیوم (TiC) می‌باشند. نانوذرات فلزی یا اکسید آن‌ها می‌توانند با خواص خود که شامل بالا بودن ضریب هدایت [۱۰ و ۱۱]، افزایش نیروی براونین<sup>۳</sup> در کنار کم بودن ویسکوزیته نسبت به اندازه ذرات در مقیاس میکرومتر، باعث افزایش چشم‌گیری در ضریب انتقال حرارت مخصوصاً در مبدل‌های حرارتی شوند، که این افزایش موجب کاهش در اندازه ساخت تجهیزات گران قیمت می‌شود. اگرچه ذرات در اندازه نانو به‌طور چشم‌گیری مشکل کلوخه شدن

1. Electro Hydrodynamic  
2. Swirl Flow Device  
3. Brownian Motion  
4. Cluster

فعال مولد حباب می‌شود [۲۶]. امواج فراصوت را می‌توان به‌صورت مستقیم یا غیرمستقیم اعمال کرد. در روش مستقیم برای انتشار امواج، پراب را به‌صورت غوطه‌وردر محلول قرار داده، ولی در روش غیرمستقیم ظرف حاوی نمونه را داخل حمامی از مایع قرار داده و سپس امواج از داخل مایع به ظرف نمونه تابانده می‌شود [۲۷]. مشکل اصلی نانوذرات عدم پایداری آن‌ها در محلول و تمایل به ته‌نشینی است که موجب رسوب بر سطح انتقال حرارت، و در نتیجه کاهش میزان انتقال حرارت می‌شوند. در این مطالعه آزمایشگاهی هدف بررسی افزایش ضریب انتقال حرارت به‌وسیله افزودن نانوذرات به محلول در جوشش استخری (رژیم هسته‌ای و ناحیه اشباع) و همچنین پایداری نانوذرات با اعمال امواج فراصوت و تغییرات pH محلول است. واضح است که دو روش ذکر شده جزء روش‌های پایداری نانوسیالات می‌باشند، اما در جوشش استخری به‌علت تولید حباب بر روی سطح انتقال حرارت، پایداری پیچیده و متفاوت‌تر می‌شود زیرا هنگام تولید و جدایش حباب‌ها از روی سطح انتقال حرارت، نانوذرات معلق در محلول به محض جدا شدن هر حباب از سطح انتقال حرارت بر روی سطح نشسته و رسوب می‌کنند. بنابراین لازم است بررسی شود که کدامیک از دو روش موجود، موجب کاهش رسوبات و افزایش میزان انتقال حرارت می‌شود. به‌طور کلی، باید مشخص شود کدام روش پایداری برای نانوذرات در جوشش استخری، عملکرد بهتری داشته بدون اینکه باعث به‌وجود آمدن مشکلات و موانعی برای افزایش میزان انتقال حرارت شود. اصلی‌ترین تفاوت این کار با دیگر تحقیقات را می‌توان در بهینه کردن جزء به جزء پارامترهای تأثیرگذار نانوذرات، امواج فراصوت و همچنین مقیاس pH محلول ذکر نمود. تأثیرگذاری امواج مافوق صوت و مقیاس pH بر پایداری نانوذرات و در نهایت مقایسه این دو از دیگر نوآوری‌های این کار می‌باشد.

به‌طور خلاصه در نقطه ایزوالکتریک، نیروی دافعه بین ذرات به کمترین مقدار خود می‌رسد. گودرزی [۱۸] نشان داد که با تغییر pH نانوسیال  $\text{CuO-H}_2\text{O}$  و دور شدن از نقطه ایزوالکتریک نانوذرات (به‌دلیل اینکه نانوسیال‌ها اسیدی یا بازی‌تر می‌شوند)، بازده انتقال حرارت افزایش می‌یابد. سرافراز [۱۹] نشان داد که برای نانوذرات  $\text{CuO}$  محلول در آب، نقطه ایزوالکتریک در  $\text{pH} = 8/33$  بوده، بنابراین برای تثبیت نانوسیال  $\text{CuO}$ ، pH سوسپانسیون باید تاجایی که امکان دارد کمتر یا بیشتر از  $8/33$  باشد که در نهایت pH برابر با  $10/2$  را به‌عنوان بهترین مقدار برای پایداری نانوذرات  $\text{CuO}$  اعلام کرد. از طرفی، پیغمبرزاده [۲۰] در آزمایش‌های خود بیان کرد که pH برابر  $10/1$ ، نانوذرات  $\text{CuO}$  را در محلول به پایدارترین حالت می‌رساند. روش سوم در پایداری نانوذرات استفاده از امواج فراصوت است که از آن برای شکست یا ضعیف کردن نیروی جاذبه واندروالسی در سطح تماس بین ذرات می‌توان استفاده کرد. در صورتی که امواج فراصوت نتوانند کلوخه شدن نانوذرات را به‌طور کامل در هم بشکنند، اما با تبدیل آن‌ها به تراکم‌های کوچک‌تر، موجب افزایش پایداری در نانوسیال می‌شوند [۲۱]. البته کاهش رسوبات یا شکستن کلوخه‌ها به قدرت و مدت زمان تابش امواج فراصوت بستگی دارد. محبوبول [۲۲] مشاهده کرد که پراکندگی نانوذرات با افزایش زمان تابش امواج فراصوت، هدایت حرارتی بالاتر و ویسکوزیته پایین‌تری حاصل می‌گردد. امواج فراصوت با شدت بالا در محلول انتشار پیدا کرده و باعث کاویتاسیون می‌شود [۲۳]. حباب‌هایی که در اثر کاویتاسیون تولید شده، طی چندین دوره رشد می‌کنند و بعد از رسیدن به قطر بحرانی خود متلاشی می‌شوند [۲۴]. اثر مثبت کاویتاسیون ناشی از امواج فراصوت بر روی انتقال حرارت جامد-مایع قبلاً توسط کیم بررسی شده است [۲۵]. از طرفی، تابش امواج فراصوت با جلوگیری از نشست ذرات بر روی سطح گرم‌کن، مانع از مسدود شدن نقاط

دامنه ولتاژ ۷-۱۰۰ تا ۲۲۰ و به صورت پلکانی ۷-۲۰ افزایش یافت. پس از هر بار تغییر ولتاژ به سیستم اجازه داده شد که از نظر تغییرات دمایی ایجاد شده پایدار شده (معمولاً بین ۲ تا ۳ min)، سپس نتایج را ثبت کرده و مجدد ولتاژ افزایش داده می‌شد. برای ثابت نگه داشتن حجم (۲ L) و غلظت محلول در حال جوشش از یک کندانسور دربالای آکواریوم جهت میعان کردن بخارات و برگشت به مخزن استفاده شده است. جهت ایجاد امواج فراصوت، از دستگاه USH 1200 Generator Ultrasonic Homogenizer با توان ۱/۲ kW و فرکانس ۲۴ kHz استفاده شد که جزئیات بیشتر در شکل ۱ قابل مشاهده است.

#### سیستم اندازه‌گیری

برای اندازه‌گیری مقدار ولتاژ و آمپر مصرفی از یک مولتی‌متر در محدوده ۷-۱۰۰۰ mV و ۲۰ A  $\sim 1 \mu A$  استفاده شد. همان طور که در شکل ۱ مشاهده می‌گردد جهت ثبت تغییرات دمای ایجاد شده در سطح گرم‌کن، از سه عدد ترموکوپل در سه سوراخ ایجاد شده با زاویه  $120^\circ$  نسبت به هم استفاده شده است. این سوراخ‌ها در نزدیک‌ترین فاصله ممکن به قطر خارجی استوانه یعنی ۱ mm قرار داده شده‌اند. قطر هر سوراخ ۲ mm و عمق آن نیز ۵۰ mm است. در درون هر سوراخ یک ترموکوپل نوع K با طول سنسور ۵۰ mm و قطر ۲ mm، با محدوده عملکرد  $180^\circ C$  تا  $750^\circ C$  و دارای حساسیت  $41 \mu V \cdot ^\circ C^{-1}$  قرار داده شد. صفحه نمایش دمایی که ترموکوپل‌ها به آن وصل شده تک کاناله، از نوع LCD و مدل آن HANYOUNG ED6-FKMAP4 با دقت خواندن دما به صورت اعشاری و با خروجی ۵ A می‌باشد. برای اندازه‌گیری ضریب هدایت حرارتی محلول نانوسیال، از دستگاه KD2pro مدل DECAGON ساخت آمریکا که امکان اندازه‌گیری در محدوده  $50^\circ C$  تا  $150^\circ C$  دارد است، استفاده گردید. جهت اندازه‌گیری میزان pH محلول نیز از دستگاه pH متر مدل MI150 ساخت کمپانی Milwaukee ایتالیا استفاده شد.

در ادامه، به بررسی مهم‌ترین مدل‌های پیش‌بینی ضریب انتقال حرارت پرداخته شده است. روزنو [۲۸] مدل خود را بر این فرض که حرکت حباب‌ها از ابتدای ترک سطح انتقال حرارت، بیشترین اهمیت را دارا هستند، ارائه نمود. کوتاتلادزه [۲۹] مدل خود را با استفاده از دو پارامتر بدون بعد و بدون لحاظ کردن زبری سطح انتقال حرارت محاسبه و ارائه داد. استفان [۳۰] معادل خود را با استفاده از برازش چندگانه و با تحلیل و به‌کارگیری ۵۰۰۰ نتایج آزمایشگاهی از ۷۲ مقاله، برای سطوح افقی و تحت فشار اتمسفریک به‌دست آورد. گارنفلو [۳۱] با بررسی و تحلیل آزمایش‌های بی‌شمار و حجم زیادی از داده‌ها، مدل خود را ارائه کرد. مدل گارنفلو تابعی از زبری سطح  $R_p$ ، فشارکاهیده و شار حرارتی است. علوی فاضل [۳۲] با مطالعات آزمایشگاهی برروی محلول‌های خالص (مانند آب دی‌یونیزه و مایعات الکلی) با استفاده از اصل حالات متناظر و آنالیز ابعادی مدل خود را ارائه نمود. این مدل‌های ریاضی در جدول ۱ آورده شده است.

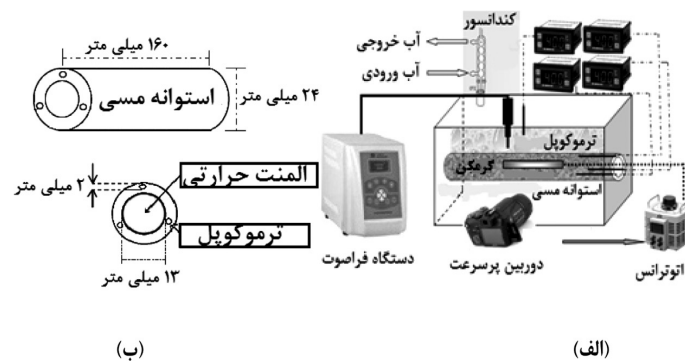
#### مواد و روش‌ها

##### دستگاه آزمایشگاهی

سیستم مورد مطالعه از یک ظرف مکعب شکل از جنس شیشه‌ای (آکواریوم) به ضخامت ۱۰ mm که دارای مقاومت حرارتی بالا و ابعاد ۱۸۰، ۹۰ و ۳۵۰ mm که به ترتیب طول، عرض و ارتفاع می‌باشند، ساخته شده است. در مرکز این ظرف از یک استوانه‌ای توخالی از جنس مس به قطر خارجی، قطر داخلی و طول به ترتیب ۱۳، ۲۴ و ۱۶۰ mm با زبری متوسط سطح  $0.84 \mu m$  به‌عنوان گرم‌کن تعبیه شده است. جهت تولید حرارت، داخل استوانه یک لامپ مدادی به قطر و طول به ترتیب ۱۱ و ۱۶۰ mm با توان حداکثر ۱ kW قرار داده شده است. همچنین برای تغییر در ولتاژ ورودی به لامپ، از یک اتوترانس با توان ۱ kW که قادر به تغییر ولتاژ در بازه ۷-۳۰۰ است، استفاده گردیده است.

**جدول ۱ روابط برای پیش‌بینی ضریب انتقال حرارت جوشش استخری**

محقق	رابطه ریاضی مدل
روزنو [۲۸]	$\frac{h\beta'}{k} \left[ \frac{gc\sigma}{g(\rho_l - \rho_v)} \right]^{\frac{1}{2}} = C_r \left[ \frac{\beta'}{\mu} \left( \frac{g_c\sigma}{g(\rho_l - \rho_v)} \right)^{\frac{1}{2}} \frac{q}{A} \right]^{\frac{2}{3}} \left( \frac{c\mu}{k} \right)^{-0.7}$
کوتاتلادزه [۲۹]	$h = \left[ 3.37E - 9 \frac{k_l}{I^*} \left( \frac{H_{fg}}{C_{pl} \left( \frac{q}{A} \right)} \right)^{-2} M^{*+4} \right]^{\frac{1}{3}}, M^{*+4} = \left( \frac{p}{\rho_v} \right)^2, I^* = \left[ \frac{\sigma}{g(\rho_l - \rho_v)} \right]^{0.5}$
استفان [۳۰]	$\frac{hD_b}{k_l} = (0.24E + 7) \left( \frac{qD_b}{Ak_l} \right)^{0.673} \left( \frac{h_{fg}D_b^2}{k_l^2} \right)^{-1.58} \left( \frac{T_{sat}D_bC_{pl}}{k_l^2} \right)^{1.26} \left( \frac{\rho_l - \rho_v}{\rho_l} \right)^{5.22}$ $\frac{hD_b}{k_l} = 267 \left( \frac{qD_b}{Ak_l T_{sat}} \right)^{0.745} \left( \frac{\rho_v}{\rho_l} \right)^{0.581} \left( \frac{\alpha_l}{k_l} \right)^{0.533}$ $\frac{hD_b}{k_l} = 0.23 \left( \frac{qD_b}{Ak_l T_{sat}} \right)^{0.647} \left( \frac{\rho_v}{\rho_l} \right)^{0.297} \left( \frac{h_{fg}D_b^2}{\alpha^2} \right)^{0.371} \left( \frac{\rho_l \alpha^2}{\sigma D_b} \right)^{0.35} \left( \frac{\rho_l - \rho_v}{\rho_l} \right)^{-1.73}$
گارنفلو [۳۱]	$\frac{h}{h_0} = \left( \frac{q}{q_0} \right)^{n(p_r)} F(p_r) \left( \frac{R_p}{R_{p0}} \right)^{0.133}$ $n(p_r) = 0.9 - 0.3 p_r^{0.3}, F(p_r) = 1.73 p_r^{0.27} + \left( 6.1 + \frac{0.68}{1 - p_r} \right) p_r^2$
علوی فاضل [۳۲]	$h = \frac{3.253\sigma^{0.125} h_{fg}^{0.125} \left( \frac{q}{A} \right)^{0.876}}{T_{sat} \alpha_l^{0.145}}$



شکل ۱ الف) شماتیک دستگاه آزمایشگاهی و ب) المنت گرمایشی

را جهت پراکندگی یکنواخت تر ذرات، حدود نیم ساعت در حمام فراصوت دیجیتال Elmasonic EP20H ساخت آلمان با فرکانس ۳۷ kHz قرار داده شد. برای اطمینان از قرار داشتن فرآیند در شرایط جوشش اشباع، در طول آزمایش‌ها به کمک ترموکوپل چهارم که در محلول قرار داده شد، شرایط اشباع بودن همواره کنترل گردید. همچنین در هر مرحله از آزمایش‌ها با استفاده از دوربین فیلم‌برداری پر سرعت Sony PMW-300K1 از تغییرات رخ داده در سطح گرم‌کن و محلول در حال جوشش فیلم گرفته شد. در نهایت اثرات و تغییرات دینامیک حباب ضبط و سپس با استفاده از نرم‌افزار EDIUS (نرم‌افزاری جهت ویرایش فیلم) تصاویر را آهسته تا تغییرات دینامیک حباب (فرکانس جدایش حباب، قطر جدایش حباب و نقاط مولد حباب) مشاهده و بررسی گردد. لازم به ذکر است که هر آزمایش حداقل ۵ بار تکرار شده و میانگین داده‌های آزمایشی لحاظ شد.

#### عدم قطعیت

در این دستگاه، برای اندازه‌گیری ضریب انتقال حرارت از قانون سرمایش نیوتن به‌صورت زیر استفاده شد:

$$h = \frac{q / A}{(T_s - T_{sat})} \quad (1)$$

که در آن  $T_s$  دمای سطح انتقال حرارت،  $A$  سطح انتقال حرارت،  $h$  ضریب انتقال حرارت،  $q$  شار حرارتی و  $T_{sat}$  دمای توده سیال است که روش اندازه‌گیری هر کدام بررسی می‌شود.

دستگاه حمام ویسکوزیته دو قلوکلاس A، مدل kp0312 شرکت کیان پژوهش گستر ساخت ایران با ۲ مخزن ۲۰ لیتری، دو عدد گرم‌کن برقی با توان‌های ۱۰۰۰ و ۱۵۰۰ W، در محدوده  $20^{\circ}\text{C}$  تا  $150^{\circ}\text{C}$  و با حداکثر نوسان دما  $\pm 0.2^{\circ}\text{C}$  به‌کار گرفته شد. این دستگاه همچنین دارای ۴ زمان‌سنج مستقل با دقت ۰/۰۱ s است.

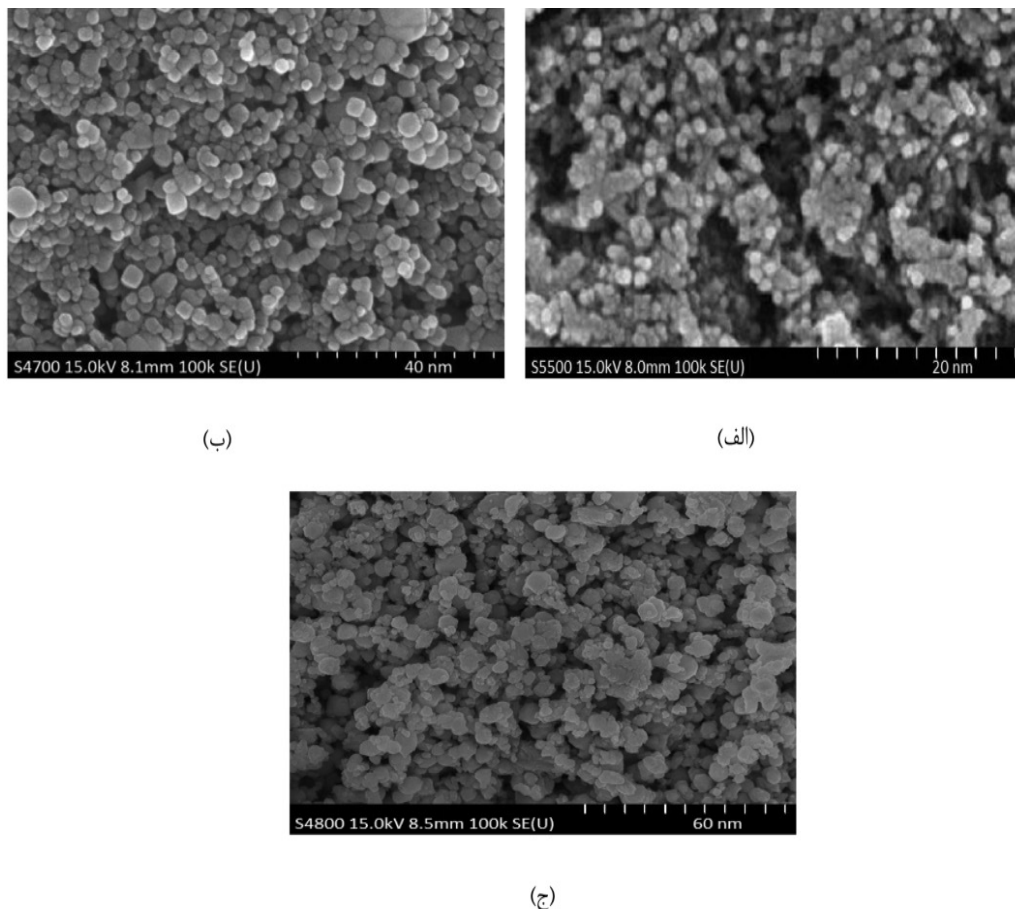
#### شرح آزمایش‌ها

آزمایش‌ها ابتدا با آب دی‌یونیزه شده به‌عنوان محلول پایه به حجم ۲ L و سپس با اضافه کردن نانوذرات مس اکسید ( $\text{CuO}$ ) با وزن مولی  $79.55 \text{ g. mol}^{-1}$  و چگالی  $6.4 \text{ g. cm}^{-3}$  ساخت کمپانی platonicananotech کشور هند، انجام گرفت. مشخصات نانوذرات در **جدول ۲** نشان داده شده است. شکل ذرات نزدیک به کروی با غلظت ۰/۰۲۵ wt.% به آب دی‌یونیزه با سه اندازه ۲۰، ۴۰ و ۶۰ nm اضافه شد. تصاویر میکروسکوپ الکترونی (SEM) در **شکل ۲** قابل مشاهده می‌باشند. پس از تعیین بهترین اندازه نانوذره جهت افزایش ضریب انتقال حرارت، در مرحله بعد جهت تعیین غلظت بهینه با افزایش درصد وزنی‌های نانوذرات، از ۰/۰۲۵ wt.% تا ۰/۱۲۵ wt.% با گام ۰/۰۲۵ wt.% استفاده شد. در مراحل بعدی برای بررسی پایداری نانوسیال به‌ترتیب تغییر pH (استفاده از HCl و NaOH جهت تنظیم) و سپس امواج فراصوت به‌کار گرفته شد. قبل از استفاده از درصد وزنی‌های مختلف نانوسیال، محلول نانوسیال

جدول ۲ مشخصات نانوذرات مس اکسید.

اندازه (nm)	جرم مولی ( $\text{g. mol}^{-1}$ )	چگالی ( $\text{g. cm}^{-3}$ )	رنگ	خلوص %	فرمول شیمیایی	ماده
۲۰، ۴۰ و ۶۰	۷۹/۵۵	۶/۴	پودر سیاه	۹۹/۹	CuO	نانوذرات مس اکسید





شکل ۲ تصاویر میکروسکوپ الکترونی (SEM) نانوذرات اکسیدمس: الف) مقیاس ۲۰ nm، ب) مقیاس ۴۰ nm و ج) مقیاس ۶۰ nm

و تحلیل نتایج حائز اهمیت است و از طرف دیگر، مکان نصب ترموکوپل‌ها در فاصله کمی با سطح بیرونی گرم‌کن قرار دارند و این فاصله هر چند کوچک، باعث اختلاف دمای بسیار کمی شده که برای ثبت دقیق‌تر دما، از رابطه ۴ برای تصحیح این خطا استفاده شد:

$$T_S = T_{th} - \frac{q'' b_s}{k_s} \quad (۴)$$

در این رابطه،  $b_s$  فاصله بین محل‌های نصب ترموکوپل تا سطح انتقال حرارت و  $k_s$  هدایت حرارتی سطح گرم‌کن است. میانگین درجه حرارت سه ترموکوپل ( $\bar{T}_s$ ) از رابطه ۵ محاسبه گردید:

$$\bar{T}_S = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n T_{S,i} \quad (۵)$$

از آنجا که گرم‌کن موجود در سیستم توان الکتریکی را به انرژی حرارتی تبدیل می‌کند، مقدار شار حرارتی را می‌توان با استفاده از رابطه زیر محاسبه کرد [۳۳]:

$$q/A = IV / A(\cos \varphi) \quad (۲)$$

سطح گرم‌کن نیز از رابطه زیر محاسبه می‌شود:

$$A = \pi d.L \quad (۳)$$

که در آن  $I$ ،  $V$  و  $\varphi$  به ترتیب معرف اختلاف پتانسیل الکتریکی برحسب ولت، شدت جریان برحسب آمپر و  $\varphi$  اختلاف فاز بین اختلاف پتانسیل الکتریکی (که اختلاف فاز بین اختلاف پتانسیل الکتریکی و شدت جریان ناچیز بوده عملاً می‌توان  $\cos \varphi$  را برابر واحد در نظر گرفت). از آنجا که ثبت دقیق دمای سطح گرم‌کن توسط ترموکوپل برای تجزیه

## نتایج و بحث

## مقایسه ضریب انتقال حرارت (BHTC) آزمایشگاهی

## با مدل‌های پیشین

برای صحت از عملکرد و درستی دستگاه آزمایشگاهی مورد استفاده قبل از شروع به آزمایش‌ها، چند تست بر روی آب دی‌یونیزه به‌عنوان سیال پایه انجام گرفت. سپس نتایج را با مدل‌های موجود مقایسه و نتایج در شکل ۳ آورده شده است. نتایج نشان می‌دهد، که دستگاه مورد آزمایشگاهی در محدوده مناسبی از نتایج کار می‌کند. به نحوی که نتایج به‌دست آمده در مقایسه با مدل استفان و عبدالسلام با میانگین خطای ۱۰/۳٪ بیشترین همپوشانی یا کمترین خطا و با مدل علوی فاضل خطای ۱۶/۲٪ کمترین همپوشانی را با نتایج آزمایشگاهی برای آب دی‌یونیزه داشته‌اند.

## پارامترهای نانوذرات

## تأثیر اندازه نانوذره بر BHTC

در شکل ۴ مشاهده می‌شود در ابتدا به بررسی اثرات اضافه کردن نانوذرات CuO بر BHTC و شار حرارت بحرانی در سه اندازه ۲۰، ۴۰ و ۶۰ nm غلظت ثابت ۰/۰۲۵ wt.٪ در آب دی‌یونیزه به‌عنوان سیال پایه پرداخته شده است.

حداکثر عدم قطعیت تخمین زده شده برای شار حرارتی برابر است با:

$$\frac{\delta(q/A)}{q/A} = \sqrt{\left(\frac{\delta I}{I}\right)^2 + \left(\frac{\delta V}{V}\right)^2} \quad (6)$$

همچنین برای به‌دست آوردن مقادیر خطای اختلاف دمای سطح و محلول در حال جوشش (دمای سوپرهیت) و همچنین ضریب انتقال حرارت از رابطه‌های ۷ و ۸ استفاده شده است.

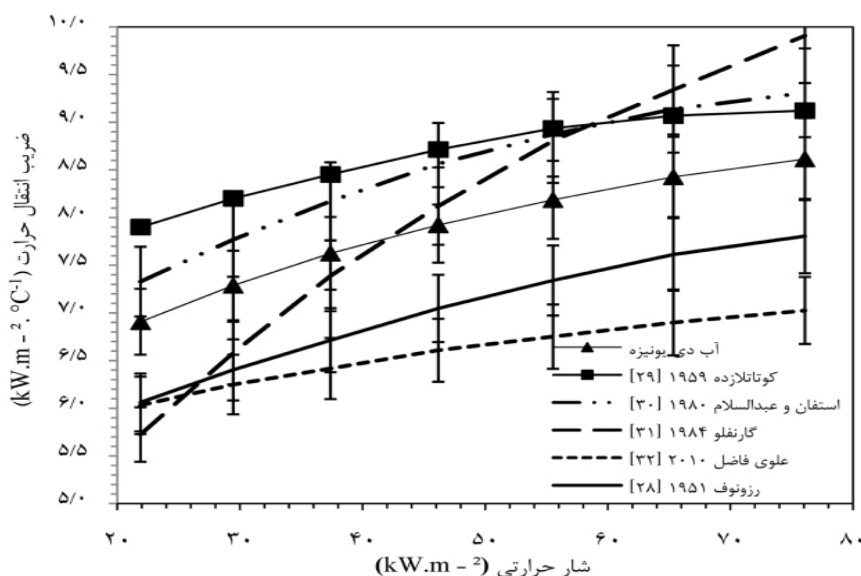
$$\delta \Delta T = \sqrt{(\delta T_s)^2 - (\delta T_{th})^2} \quad (7)$$

$$\frac{\delta h}{h} = \sqrt{\left(\frac{\delta I}{I}\right)^2 + \left(\frac{\delta V}{V}\right)^2 + \left(\frac{\delta T}{T}\right)^2} \quad (8)$$

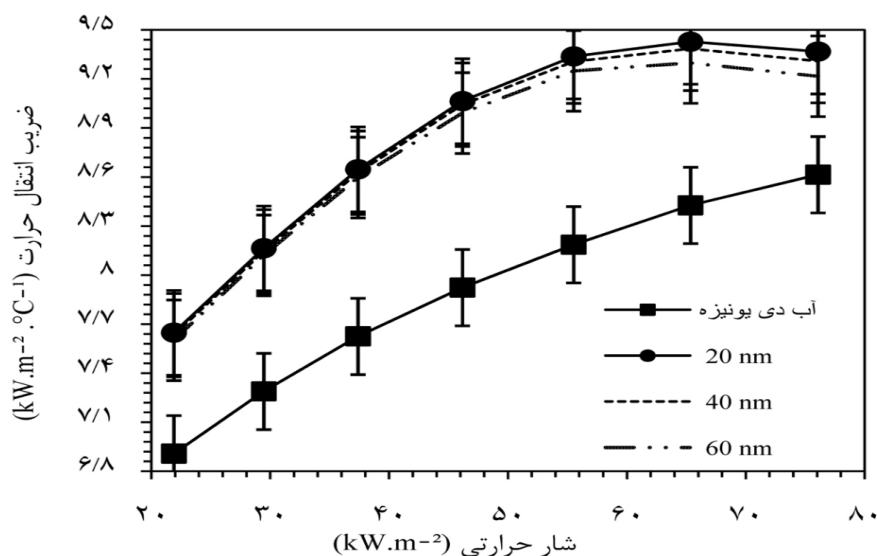
در جدول ۳ میزان عدم قطعیت دستگاه‌های اندازه‌گیری در این پژوهش آورده شده است.

جدول ۳ منابع عدم قطعیت

پارامتر	میزان عدم قطعیت
قطر و طول لوله	$\pm 0.1 \text{ mm}$
ترموکوپل، K-type	$\pm 0.1^\circ \text{C}$
ولتاژ	$\pm 0.1 \text{ V}$
جریان	$\pm 1 \text{ A}$
توان	$\pm 1.5 \text{ W}$
شار حرارت ماکزیمم $76 \text{ kW.m}^{-2}$	$\pm 1/8545 \text{ kW.m}^{-2}$
ضریب هدایت حرارتی، KD2 pro	$5 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$
زبری سنج	$\pm 5\%$



شکل ۳ مقایسه بین نتایج آزمایشگاهی با مدل‌های مرسوم نسبت به آب دی‌یونیزه.



شکل ۴ تغییرات ضریب انتقال جوشش نانو مس اکسید با غلظت ۰/۰۲۵ wt. % نسبت به آب دی‌یونیزه

دلایل مهمی در کنار افزایش دما بر افزایش نیروی براونین نقش اساسی دارد. بیشتر شدن سطح ویژه باعث می‌شود سطح بیشتری برای تبادل حرارت در اختیار سوسپانسیون قرار گیرد (جدول ۴).

جدول ۴ مقادیر سطح ویژه CuO

قطر (nm)	۶۰	۴۰	۲۰
سطح مقطع ویژه (m <sup>2</sup> .g <sup>-1</sup> )	~۱۸	~۲۰	~۳۵

براساس نظریه انتشار اینشتین سرعت براونین نانوذرات با کاهش قطر نانوذرات تا حد زیاد افزایش می‌یابد [۴۰]. افزایش دما باعث افزایش حرکت ذرات می‌شود و از آنجایی که ذرات کوچک‌تر سریع‌تر نسبت به ذرات درشت‌تر حرکت می‌کنند، در نتیجه ذرات کوچک‌تر در سطح بالاتری از حرکت براونین نسبت به ذرات بزرگ‌تر قرار می‌گیرند [۳۵]. کاهش در اندازه ذرات موجب کاهش ویسکوزیته و در نهایت افزایش در میانگین سرعت حرکات براونین می‌شود، که چندین عامل مهم مانند کسر حجمی، اندازه ذرات، درجه حرارت مایع و اثر زیادی بر ویسکوزیته می‌گذارند [۴۰].

با اضافه کردن نانوذرات CuO، افزایش چشم‌گیری در عملکرد BHTC نانوسیال، نسبت به آب دی‌یونیزه به‌دست آمده است. لو و همکاران [۳۴] در تحقیقات خود نشان دادند که با اضافه کردن نانوذرات CuO به آب دی‌یونیزه، HTC<sup>۱</sup> تا ۳۰٪ افزایش یافت. با مشاهده شکل ۴ افزایش BHTC در شارهای پایین تا حدود شار ۵۵ kW.m<sup>-2</sup> روندی صعودی داشته و پس از آن رفته‌رفته افت شدید می‌یابد. در ادامه به بررسی این افزایش و کاهش پرداخته می‌شود. همان‌طور که در بالا نیز اشاره شد افزودن ذرات فلزی در ابعاد نانومتر به‌علت داشتن هدایت حرارت بالا، باعث افزایش HTC می‌شود [۳۶ و ۳۵]. از طرفی، این افزایش فقط محدود به مقیاس در اندازه‌ی نانو نمی‌باشد، بلکه هر چه سایز ذرات در حد نانوذره باز هم کوچک‌تر شود، ضریب انتقال حرارت بیشتر و بیشتر می‌شود. نتایج نشان داده که در سایز ۲۰ nm با متوسط افزایش ۱۲/۱۷٪ و ۶۰ nm با متوسط افزایش ۱۱/۱۵٪ به‌ترتیب بیشترین و کمترین افزایش مشاهده شد. افزایش نیروی براونین<sup>۲</sup> به‌دلیل افزایش ضریب هدایت حرارتی را می‌توان دلیل مهم در افزایش BHTC نام برد [۳۹-۳۷]. حرکات براونین تنها زمانی وجود دارد که ذرات با ابعاد بسیار کوچک در سیال حضور داشته باشند.

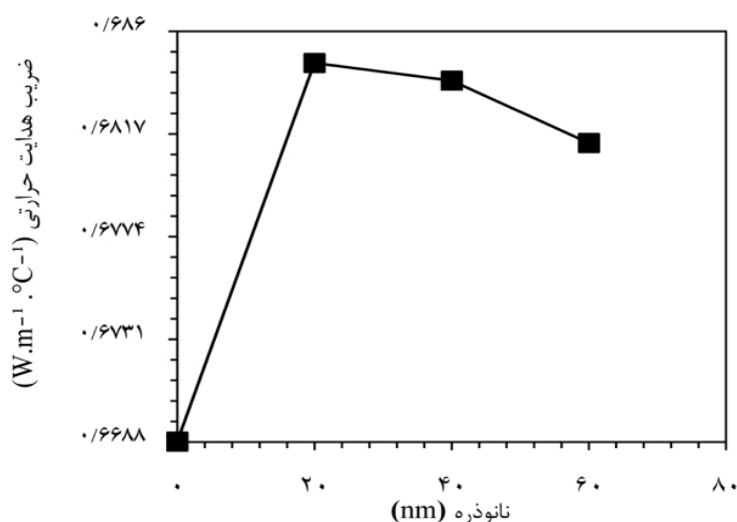
1. Heat Transfer Coefficient  
2. Brownian Motion

**شکل ۵** به بررسی تغییرات ضریب هدایت حرارت آب دی‌یونیزه و نانوذرات ۲۰، ۴۰ و ۶۰ nm در دمای  $100^{\circ}\text{C}$  می‌پردازد. از طرفی، افزایش هر چه بیشتر نیروی براونین نتیجه آن پایداری بیشتر نانوسیال است. پایداری نانوسیال موجب تشکیل رسوب کمتر بر سطح گرم‌کن می‌شود. از رسوب برروی سطح گرم‌کن باید اجتناب شود زیرا، هم باعث مسدود شدن چشمه‌های فعال مولد حباب<sup>۱</sup> شده هم‌اینکه در بلند مدت با افزایش ضخامت خود بر سطح گرم‌کن مانند یک لایه عایق عمل کرده و موجب کاهش انتقال حرارت می‌شود. کوارک و همکاران نشان دادند که هم‌زمان با تبخیر میکرو لایه‌ها در زیر حباب در حال رشد برروی سطح گرم‌کن و نهایتاً پس از جدا شدن حباب، نانوذرات به‌جای آن رسوب می‌کند [۴۱]. هر چند نتایج نشان دادند که کاهش هر چه بیشتر سایز نانوذرات به پایداری آن کمک می‌کند، اما در هر صورت رسوب به‌وجود آمده و باعث کاهش BHTC می‌شود. در بالا هم ذکر شد که هر سه نانوذره تا نزدیکی شار حرارتی  $55 \text{ kW.m}^{-2}$  عملکرد مشابه و تقریباً خطی در افزایش BHTC داشته‌اند اما بعد از آن در هر سه سایز

نانوذرات ضریب انتقال حرارت افت پیدا کرده است. عامل اصلی این افت همان‌طور که گفته شد، به‌علت رسوب و کلوخه شدن نانوذرات در حین فرآیند است. تمایل ذرات در سیال به کلوخه شدن را می‌توان به دو دلیل مهم مرتبط دانست. اول به‌دلیل وجود نیروهای واندروالس، که به ویژه در ذرات فلزی بیشتر دیده می‌شود، چون دو قطبی<sup>۲</sup> شدن یون‌ها می‌توانند به راحتی در مولکول‌های این ذرات رخ دهند. ایجاد دو قطبی باعث جذب دیگر دو قطبی‌های مجاو می‌شود. نیروهای واندروالس از جاذبه این دو قطبی‌ها ناشی می‌شود. این نیروی جاذبه به‌عنوان عامل اصلی در تجمعات ذرات، به ویژه در نانوپودرها محسوب می‌شود [۴۲]. دوم این‌که با توجه به سطح انرژی بالای نانوذرات، به راحتی انعقاد پیدا می‌کنند و در نتیجه پراکنده کردن ذرات در مایع پایه دشوار شده که این امر می‌تواند سیستم را به‌سمت کلوئیدی برده و در نتیجه پایداری نانوذرات کم می‌شود [۴۳].

#### تاثیر افزایش غلظت نانوسیال بر BHTC

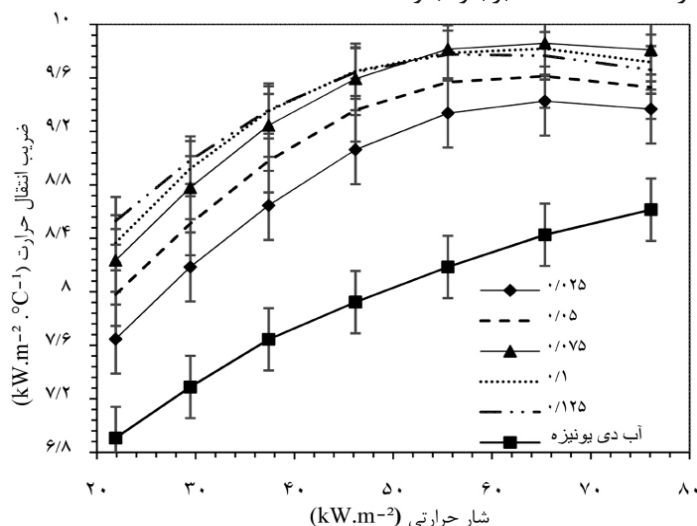
در بخش قبل نانوذره CuO در قطر ۲۰ nm به‌عنوان اندازه مطلوب در افزایش BHTC تعیین گردید.



**شکل ۵** تغییرات ضریب هدایت جوشش نانو CuO با غلظت ۰/۰۲۵ wt.٪ نسبت به آب دی‌یونیزه

به‌طوری‌که متوسط این افزایش باتوجه به جدول ۵ از غلظت ۰/۰۲۵ wt.% تا ۰/۰۷۵ wt.% به‌صورت متوسط تقریباً ۳/۴٪ افزایش پیدا کرده و پس از آن از ۰/۰۷۵ wt.% به ۰/۱ wt.% حدوداً ۵۴٪ افزایش پیدا کرده و از ۰/۱ wt.% به ۰/۱۲۵ wt.% حدوداً ۲۸٪ افزایش پیدا کرده است. مطلب دوم، افزایش BHTC در تمام غلظت‌ها تا حدوداً شار حرارتی  $55 \text{ kW.m}^{-2}$  صعودی بوده و پس از آن روند نزولی پیدا کرده‌اند. روند کاهش BHTC بعد از غلظت ۰/۰۷۵ wt.% با شدت بیشتری افت کرده است. در بررسی علت کاهش BHTC در هر دو قسمت بالا باید باز هم به رسوب و ته‌نشینی نانوذرات که مهمترین عامل است اشاره کرد. Patra و همکاران [۴۴] نیز دریافتند که BHTC در نانوسیال با افزایش غلظت در شارهای حرارتی بالا، کاهش می‌یابد به‌طوری‌که نانوذرات با رسوب بر سطح گرم‌کن باعث می‌شوند که چشمه‌های فعال مولد حباب پر شده و از طرفی، افزایش رسوب مانع رسیدن مستقیم سیال به سطح گرم‌کن و در نهایت مانند یک عایق عمل می‌کند.

در این بخش با همین قطر به بررسی تأثیرات افزایش غلظت‌های مختلف (۰/۰۲۵، ۰/۰۵، ۰/۰۷۵، ۰/۱ و ۰/۱۲۵ wt.%) پرداخته شد. شکل ۶ و جدول ۵ نشان می‌دهد که با افزایش غلظت نانوذرات از ۰/۰۲۵ wt.% تا ۰/۱۲۵ wt.% مقدار BHTC پیوسته افزایش می‌یابد. اما این روند افزایش در شارهای حرارتی پایین بیشتر بوده و هر چه شار حرارتی افزایش می‌یابد، BHTC کاهش پیدا می‌کند. کاهش BHTC با افزایش درصد غلظت وزنی، بیشتر و بیشتر هم می‌شود به‌طوری‌که بعد از غلظت ۰/۰۷۵ wt.% BHTC در شارهای پایین نیز به‌شدت افت پیدا می‌کند. علت این افزایش و کاهش‌ها را باید در عملکرد ضریب هدایت حرارتی جستجو کرد. در بخش قبل ذکر شد که با افزودن نانوذرات، ضریب هدایت حرارتی که مهم‌ترین عامل افزایش BHTC است، افزایش می‌یابد. در شکل ۷ تغییرات ضریب هدایت حرارتی با افزودن غلظت نانوذرات مشاهده می‌شود. در بررسی افزایش غلظت نانوسیال و اثر آن بر افزایش BHTC دو نکته وجود دارد: اول اینکه روند متوسط افزایش BHTC در همه غلظت‌ها برابر نبوده،

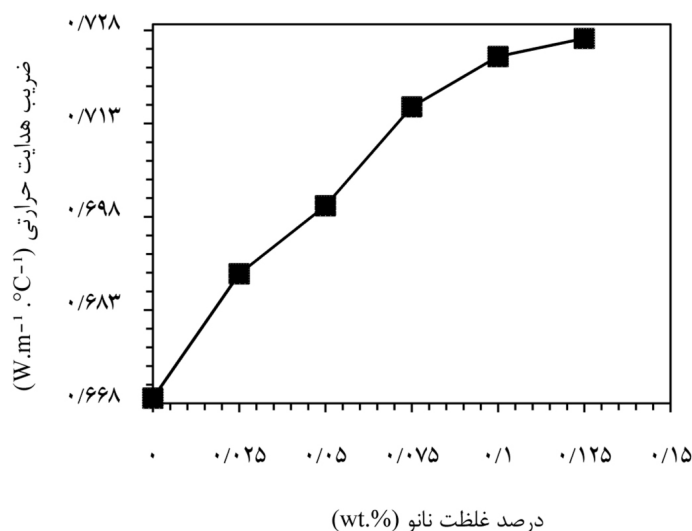


شکل ۶ تغییرات BHTC نانو مس اکسید با درصدهای جرمی مختلف نسبت به آب دی‌یونیزه

جدول ۵ متوسط تغییرات BHTC نانو CuO با غلظت مختلف نسبت به آب دی‌یونیزه

۰/۱۲۵	۰/۱	۰/۰۷۵	۰/۰۵	۰/۰۲۵	درصد وزنی نانوذره
۱۹/۷۶	۱۹/۴۸	۱۸/۹۴	۱۵/۶۴	۱۲/۱۷	درصد تغییرات





شکل ۷ تغییرات ضریب هدایت حرارت نانو CuO با غلظت مختلف نسبت به آب دی‌یونیزه در دمای ۱۰۰ °C

نانوذرات بر تغییرات دمایی نسبت به آب دی‌یونیزه را نشان می‌دهد. باز هم نتایج نشان می‌دهند که افزایش نانوذرات باعث می‌شود تا فرآیند جوشش در دمای فوق اشباع کمتر سطح انجام گیرد. اما اضافه کردن نانوذرات بیش از مقدار بهینه آن باعث می‌شود تا روند اختلاف دما کمتر شود. طبق **جدول ۶** روند متوسط اختلاف دما از غلظت ۰/۰۲۵ تا ۰/۰۷۵ wt.٪، حدود ۲/۵٪ افزایش یافته و پس از آن به کمتر از ۰/۵٪ رسید. هر چند افزایش غلظت، کاهش تغییرات BHTC را به دنبال داشته اما در افزایش شارحرارتی بحرانی نقشی مؤثر ایفا کرده به طوری که این نتیجه با نتایج محققین [۵۱ و ۵۰] هم‌خوانی دارد. تا اینجا مشخص شد که استفاده از نانوذرات CuO به سیال پایه باعث افزایش ضریب هدایت حرارتی و به دنبال آن باعث افزایش BHTC شده است. اما مشکل اصلی نانوذرات در شارهای حرارتی بالا بود که به شدت به علت ناپایداری و رسوب کردن نانوذرات باعث کاهش BHTC می‌شود. در ادامه به بررسی روش‌های متداول برای پایداری نانوذرات یعنی تغییر pH و تاباندن امواج فراصوت به نانوسیال برای پایدار نگه داشتن نانوذرات در سه غلظت ۰/۰۷۵، ۰/۱ و ۰/۱۲۵ wt.٪ با بالاترین BHTC در طول آزمایش‌ها، پرداخته می‌شود.

کیم و همکاران [۴۵] دریافتند در فرآیند جوشش برخی از نانوذرات روی سطح گرم‌کن رسوب کرده و لایه رسوب، ترشوندگی را از طریق تغییر کاهش زاویه تماس استاتیکی روی سطح گرم‌کن افزایش می‌دهد. بنابراین با افزایش ترشوندگی سطح احتمال پاشیدن حفره‌ها با نانوسیال افزایش، چشمه‌های فعال کاهش و BHTC نیز کاهش می‌یابد. نتیجه به دست آمده با نتیجه بسیاری از محققین، که BHTC با افزایش غلظت نانوذرات در شارهای حرارتی بالا کاهش پیدا کرده است، هم‌خوانی دارد [۴۹-۴۶]. علت افزایش ترشوندگی و پاشیدن حفرات به دو دلیل اصلی است: اول اینکه در فرآیند جوشش هنگام جدا شدن حباب از روی سطح گرم‌کن موجب می‌شود که مقداری از نانوذرات جای حباب را بگیرند. دوم اینکه از طرفی نیروهای واندروالس (نیروی جاذبه و عامل اصلی در تجمعات ذرات) با افزایش جرم و حجم مولکول، افزایش یافته، که باعث افزایش کلوخه شدن بیشتر نانوذرات می‌شود. طبق نتایج، نکته‌ای که در مورد افزودن نانوذرات به سیال وجود دارد اینست که نمی‌توان به هر اندازه مقدار نانوذرات را به علت ناپایداری در سیال افزایش داد، یعنی مقداری بهینه باید تعیین گردد. **جدول ۶** اثرات افزایش درصد وزنی غلظت

جدول ۶ متوسط درصد تغییرات فوق اشباع سطح گرم‌کن نانو CuO با غلظت مختلف نسبت به آب دی‌یونیزه.

درصد وزنی نانوذره	۰/۰۲۵	۰/۰۵	۰/۰۷۵	۰/۱	۰/۱۲۵
درصد تغییرات	-۱۰/۸۳	-۱۳/۴۸	-۱۵/۹۰	-۱۶/۲۴	-۱۶/۴۰

و روند افزایشی ضریب انتقال حرارت را ادامه دهد چرا که با رسوب نانوذرات، ضریب هدایت حرارتی و در نتیجه ضریب انتقال حرارت کاهش پیدا می‌کند. در ادامه، pH از ۹/۵ به ۱۰ افزایش داده شد. نتایج در شکل ۸ (ب و ج) نشان می‌دهد که افزایش pH از ۹/۵ به ۱۰، ضریب انتقال حرارت در غلظت wt.٪ ۰/۱ به بیشترین مقدار رسیده است. اما ضریب انتقال حرارت با افزایش pH از ۱۰ به ۱۰/۵ کاهش پیدا می‌کند. هر چند که pH= ۱۰/۵ طبق جدول ۷ بیشترین افزایش ضریب انتقال حرارت را داشته اما، بیشتر این افزایش‌ها در شارهای حرارتی پایین بوده و هر چه شار حرارتی افزایش پیدا کند، روند آن کاهشی می‌شود. بالاترین ضریب انتقال حرارت به دست آمده مقدار  $10/15 \text{ kW.m}^2$  در  $\text{pH} = 10$  و در غلظت wt.٪ ۰/۱ است که نشان می‌دهد بهترین میزان pH برای نانوسیال CuO مقدار ۱۰ می‌باشد که این نتیجه با نتایج دیگر محققین برای نانوسیال CuO هم‌خوانی دارد [۲۰ و ۱۹].

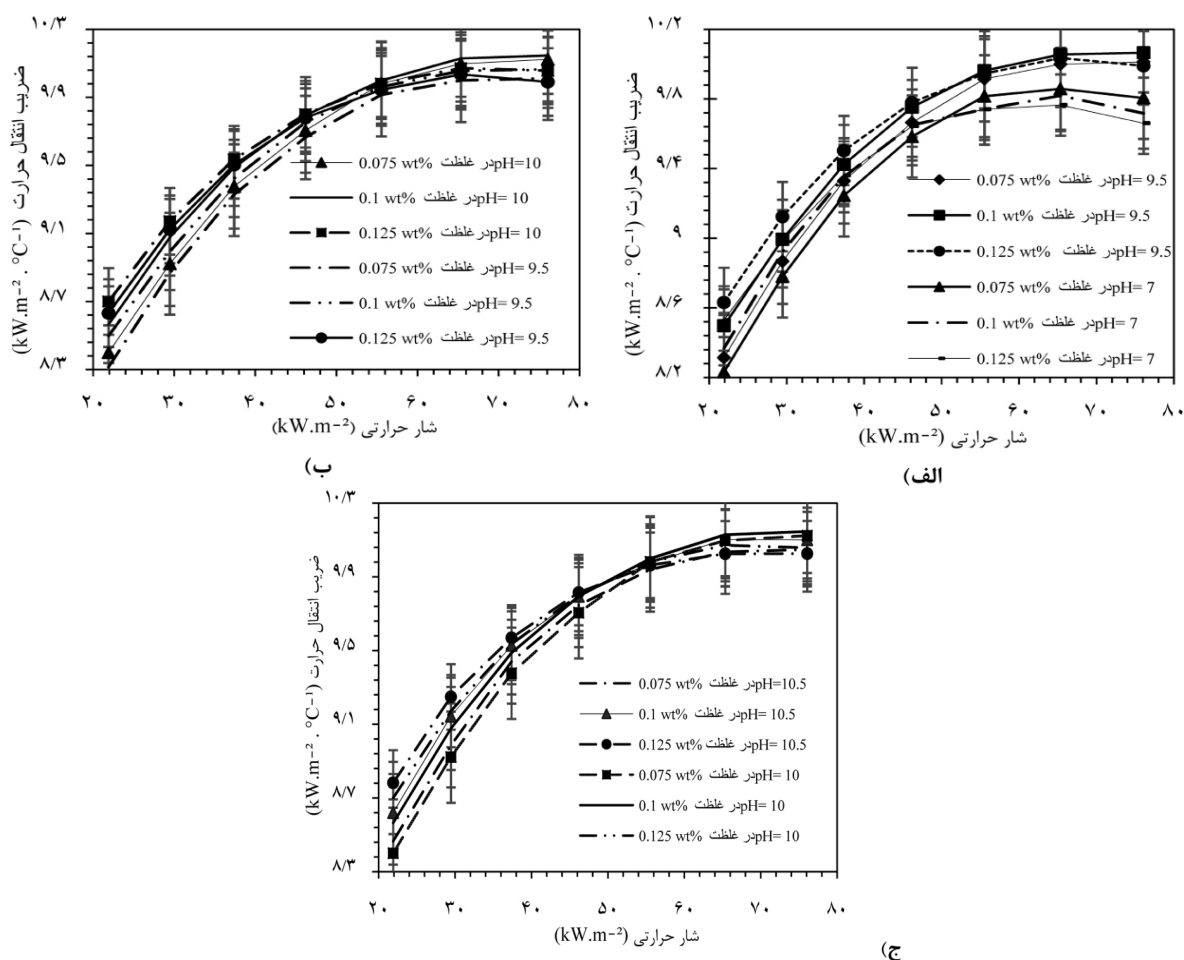
در مورد تغییرات ایجاد شده توسط pH بر ضریب انتقال حرارت دو نکته وجود دارد: اول میزان پایداری نانوذرات و دور شدن از نقطه ایزوالکتریک و دوم تغییر در قطر جدایش حباب است. در مورد نقطه ایزوالکتریک بیان شد که با تغییر pH، نانوسیال از نقطه ایزوالکتریک دور می‌شود و با افزایش نیروهای دافعه بین ذرات خود پایدارتر می‌شود. قطر جدایش حباب نیز پارامتری مهم و شناخته شده در تعیین شدت انتقال حرارت در طی فرآیند جوشش است [۵۴-۵۱]. هر چه قطر جدایش حباب افزایش پیدا کند، اختلاط و آشفته‌گی در محلول در حین فرآیند بیشتر می‌شود. اما با افزایش pH محلول، قطر جدایش حباب‌ها کوچک‌تر شده، که علت آن نیز کاهش کشش سطحی به واسطه افزایش pH است.

تغییرات اعمال شده در هر دو روش در سه سطح (مقدار)، برای پیدا کردن سطح بهینه آزمایش گردید. انتخاب حدود برای شروع این سطوح براساس مقادیری بوده که در مقالات پیشین ذکر شده بود. نکته مهم که باید ذکر شود این است که این دو روش پایداری نانوسیالات، روش‌های معمولی هستند که همواره برای همه شرایط فرآیندی (جوشش و غیر جوشش) انجام گرفته‌اند و حال باید بررسی شود که، نتایج و اثرات این روش‌ها در فرآیند جوشش استخری تا چه حد مؤثر می‌باشند.

#### پایدارکننده‌های نانوذرات

##### تأثیر تغییر pH بر BHTC

اولین مرحله برای پایدار کردن نانوذرات، تغییر pH نانوسیال و تأثیر آن بر ضریب انتقال حرارت است. شکل ۸ (الف-ج)، تغییرات pH در سه سطح ۹/۵، ۱۰ و ۱۰/۵ برای پایداری نانوسیال CuO و در سه غلظت wt.٪ ۰/۱۲۵، ۰/۱ و ۰/۰۷۵ را نشان می‌دهد. اولین مرحله برای پایدار کردن نانوذرات، تغییر pH نانوسیال و تأثیر آن بر ضریب انتقال حرارت است. لازم به ذکر است که pH اولیه آب دی‌یونیزه مورد مطالعه برابر ۷ اندازه‌گیری شد. همچنین محدوده انتخابی pH برای رسیدن به نتیجه بهتر و سریع‌تر از نتایج تحقیقات قبلی انتخاب شده است [۳۰ و ۲۹]. با افزایش pH نانوسیال از ۷ به ۹/۵ در شکل ۸ (الف) نتایج نشان می‌دهند که تغییر pH تأثیر مثبت برروی افزایش ضریب انتقال حرارت می‌گذارد. اما تأثیر pH در تمام طول فرآیند مطلوب نبوده، به‌طوری که تا شار حرارتی  $55 \text{ kW.m}^2$  روند تغییرات ضریب انتقال حرارت صعودی بوده و بعد از آن این روند کاهش پیدا کرده است یعنی افزایش pH به ۹/۵ نتوانسته در تمام طول آزمایش‌ها، پایداری نانوذرات را حفظ کند



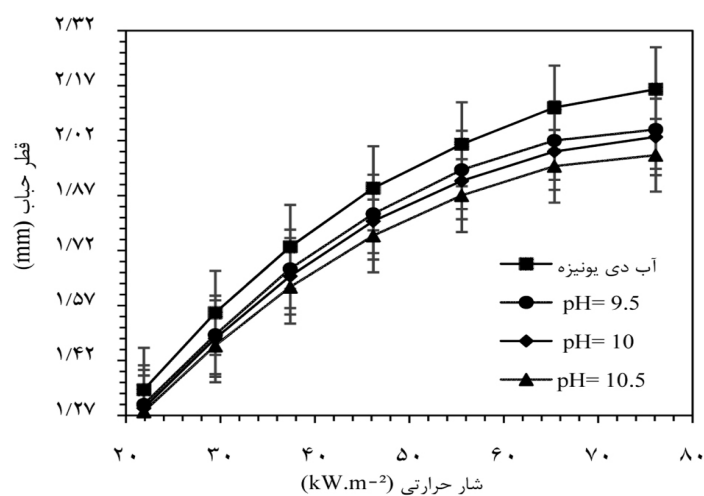
شکل ۸ تاثیر pH بر ضریب انتقال حرارت در جوشش نانوسیال: الف) ۹/۵، ب) ۹/۵ و ۱۰ و ج) ۱۰ و ۱۰/۵

جدول ۷ متوسط درصد تغییرات BHTC در سه سطح pH نسبت به آب دی یونیزه.

درصد وزنی نانوذره	۰/۰۷۵	۰/۱	۰/۱۲۵
pH= ۹/۵	۲۰/۳۴	۲۱/۵۷	۲۲/۱۱
pH= ۱۰	۲۱/۲۵	۲۲/۳۹	۲۲/۶۸
pH= ۱۰/۵	۲۱/۴۰	۲۲/۵۴	۲۲/۶۱

تشکیل رسوب باعث کاهش قطر حباب می‌شود [۵۵]. نانوذرات با رسوب بر روی سطح گرم‌کن باعث به‌وجود آمدن چشمه‌های جدید مولد حباب اما کوچک‌تر شده اما با گذر زمان ذرات دیگری با وارد شدن به این چشمه‌های فعال آن‌ها را به چشمه‌های کوچک‌تر تبدیل می‌کنند. شکل‌های ۹ و ۱۰ (الف-د) تغییرات قطر جدایش حباب را با تغییر pH نشان می‌دهند.

کاهش کشش سطحی باعث می‌شود تا حباب‌ها در هنگام رشد بر روی سطح گرم‌کن فرصت کمتری برای رشد داشته باشند و در نتیجه قطر جدایش آن‌ها کاهش یابد. ولی افزایش pH از ۹/۵ به بالا، موجب کاهش بیش از حد کشش سطحی شده که منجر به کاهش مقدار زیاد قطر جدایش حباب و در نتیجه کاهش ضریب انتقال حرارت را در پی دارد. در مورد کاهش قطر حباب، تأثیر رسوب نانوذرات CuO بر سطح گرم‌کن نیز باید در نظر گرفته شود. زیرا



شکل ۹ تأثیر pH بر قطر جدایش حباب نانوسیال



پH= ۹/۵ (ب)



پH=۷ (الف)



پH= ۱۰/۵ (د)



پH=۱۰ (ج)

شکل ۱۰ تصاویر واقعی تأثیر pH بر قطر جدایش حباب

#### تأثیر اعمال امواج فراصوت بر BHTC

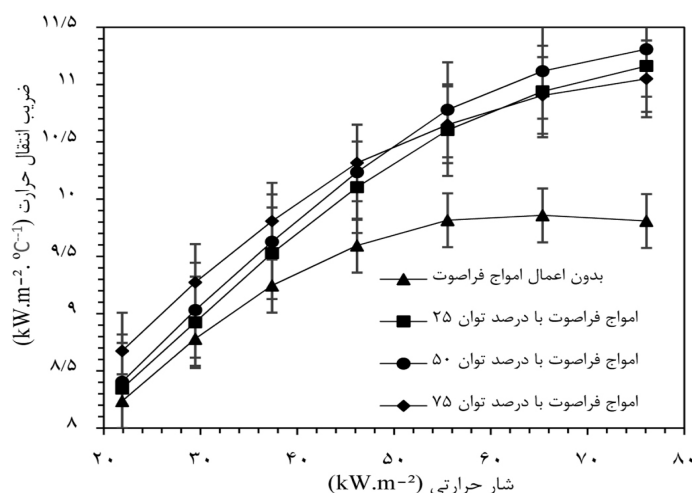
در این قسمت به بررسی اثر تابش امواج فراصوت بر ضریب انتقال حرارت پرداخته شده است. دستگاه انتخابی از نوع روش مستقیم، یعنی قرار دادن پراب دستگاه به‌طور مستقیم در محلول است. اما

استفاده از پراب شامل در نظر گرفتن چندین پارامتر هم‌زمان، از قبیل میزان توان دستگاه، سیکل، زمان تایش و میزان فاصله سنسور پراب از سطح گرم‌کن است. دستگاه دارای شدت فرکانس ۲۴ kHz بوده که در سه درصد توان ۲۵، ۵۰ و ۷۵ استفاده شده است.

در بخش قبلی مشخص شد که دوره تابش در توان ۵۰٪، بهترین عملکرد را در افزایش ضریب انتقال حرارت دارد. حال به بررسی پارامتر دوم در تنظیم امواج فراصوت یعنی دوره یا سیکل تابش که شامل دو زمان بوده پرداخته می شود. این دو زمان شامل زمان تابش و زمان استراحت است. در این تحقیق با توجه به تجربیات آزمایشگاهی و شرایط آزمایشگاهی از سه دوره ۱-۱ و ۱-۰/۵ و ۰/۵-۰/۵ استفاده شده که عدد سمت راست زمان استراحت و عدد سمت چپ زمان تابش امواج و به صورت ثانیه هستند. **شکل ۱۲** و **جدول ۹** نشان می دهد که با تنظیم دوره تابش به صورت ۰/۵ - ۰/۵ بهترین شرایط پایداری محقق می شود زیرا این زمان با تابش بیشتر و اما کوتاه موجب حذف احتمالی نانوذرات از سطح و همچنین تولید حباب بیشتر در محلول شده و در نتیجه منجر به بیشترین میزان ضریب انتقال حرارت شده است. در جوشش هسته ای به سبب تولید حباب ها در حجم بالا لازم است که حباب ها سریعاً از سطح انتقال حرارت حذف و جای خود را به حباب های تازه دهند.

فاصله سنسور پراب از سطح گرم کن، با آزمایش های مختلف ۴ cm که بیشترین تأثیر را بر افزایش ضریب انتقال حرارت داشته است، انتخاب شد. همان طور که در **شکل ۱۱** نیز مشاهده می شود، اعمال امواج فراصوت باعث افزایش ضریب انتقال حرارت شده است زیرا این امواج با تغییر دما و فشار در محلول باعث ایجاد پدیده کاویتاسیون (حباب زایی) و افزایش قطر حباب در محلول می شوند. همان طور که در بالا هم اشاره شد، قطر جدایش حباب در نانوسیال ها نسبت به سیال پایه کوچک تر است و هر چه حباب بزرگ تر تولید شود در نتیجه اغتشاشات بیشتر شده و ضریب انتقال حرارت نیز افزایش می یابد [۵۶]. امواج فراصوت فرکانس پایین ۲۴ kHz استفاده شده در این تحقیق توانایی تشکیل حباب های بزرگ تر را دارا می باشند. یعنی امواج فراصوت اثری را که نانوذرات بر کاهش قطر جدایش حباب در محلول دارند را جبران می کند. در **جدول ۸** میزان تغییرات اعمال فراصوت در توان های مختلف نسبت به حالت بدون اعمال فراصوت نشان داده شده است.

بهینه کردن دوره تابش امواج فراصوت بر BHTC

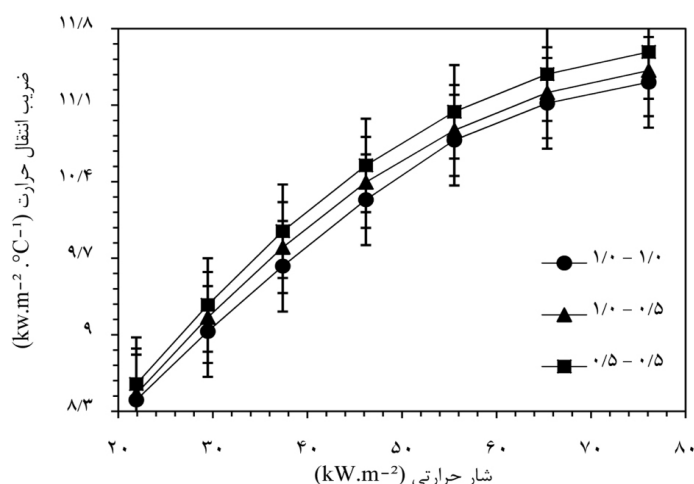


شکل ۱۱ تغییرات BHTC نانو سیال با درصد توان های مختلف فراصوت در غلظت ۰/۱۲۵٪

**جدول ۸** تغییرات عددی متوسط BHTC نانوسیال در غلظت ۰/۱۲۵٪ با درصد توان های مختلف تابش فراصوت نسبت به بدون تابش.

درصد توان امواج فراصوت	۲۵	۵۰	۷۵
$h \text{ (kW.m}^{-2}.\text{°C}^{-1}\text{)}$	۶/۳۲	۳۷/۴۸	۳۴/۸





شکل ۱۲ تغییرات متوسط BHTC نانوسیال با غلظت ۰/۱۲۵٪ بادامنه تابش مختلف

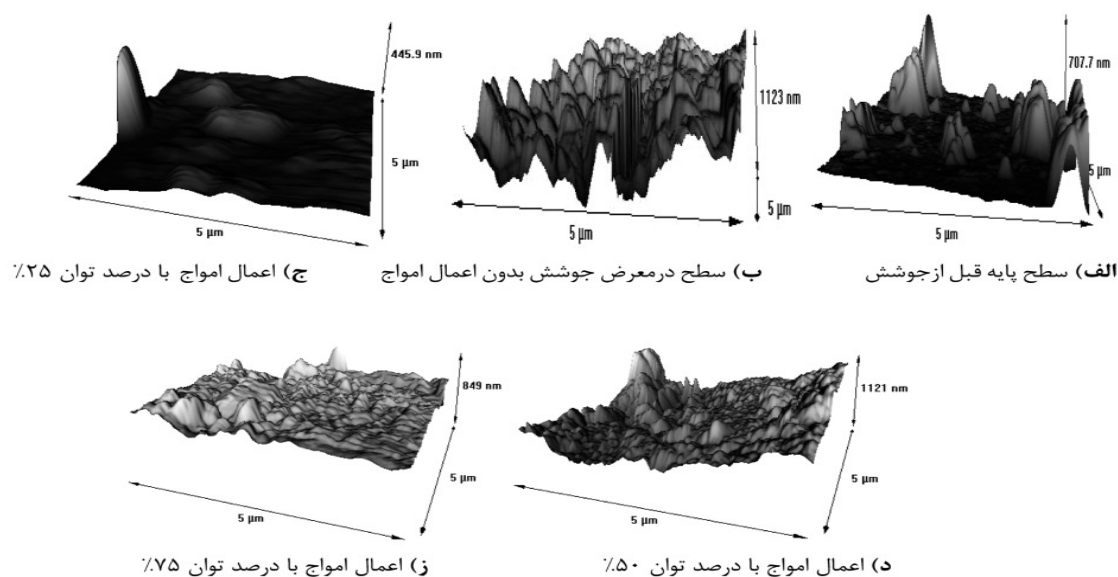
جدول ۹ تغییرات عددی متوسط BHTC نانو سیال با غلظت ۰/۱۲۵٪ باسیکل تابش مختلف نسبت به ۱-۱

زمان (s)	۱-۰/۵	۰/۵-۰/۵
h (kW.m <sup>-2</sup> .°C <sup>-1</sup> )	۱/۱۴	۲/۵۸

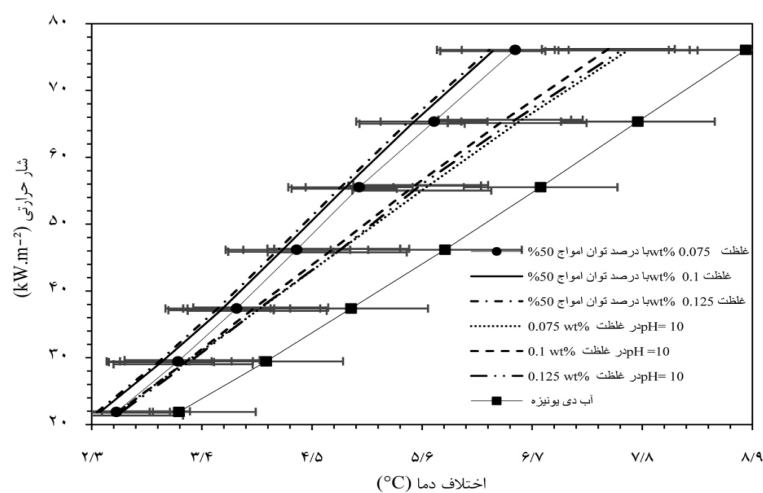
فوق اشباع سطح انتقال حرارت شده و با حرکت منحنی‌ها به سمت چپ، نشان می‌دهد شار حرارت بحرانی افزایش یافته است. تعدادی از محققین دیگر همچون داگلاس [۵۸]، ایدا و تسوتسی [۵۹] تأیید کردند که شار حرارت بحرانی با استفاده از ارتعاشات فراصوت افزایش می‌یابد. همچنین، تغییرات pH در افزایش شار بحرانی مؤثر بوده که در شکل به وضوح دیده می‌شود. در بخش پایانی کار و در شکل ۱۵ به مقایسه عملکرد دو روش اعمال شده در این پژوهش یعنی افزایش پایداری نانوذرات و تأثیر آن بر افزایش ضریب انتقال حرارت در جوشش استخری پرداخته شده است. البته در این مقایسه به علت تعداد زیاد آزمایش‌ها، مقایسه بین بهترین حالت ممکن به دست آمده در هر روش صورت گرفته است. برای تغییر pH=۱۰ و برای تابش امواج فراصوت، توان ۵۰٪ استفاده شده است. همان‌طور که مشخص است و در قسمت‌های قبلی هم توضیح داده شد، امواج فراصوت به‌طور متوسط با افزایش ضریب انتقال حرارتی برابر با ۳۷/۴۸٪ در غلظت ۰/۱۲۵ Wt.٪ به بهترین عملکرد دست پیدا کرده است.

بنابراین در این مطالعه دوره تابش به‌صورت ۰/۵-۰/۵ با تابش مداوم و در زمان کم‌تر نسبت به دوره ۱-۱، حباب‌ها سریع‌تر حذف و جای خود را به حباب‌های تازه می‌دهند.

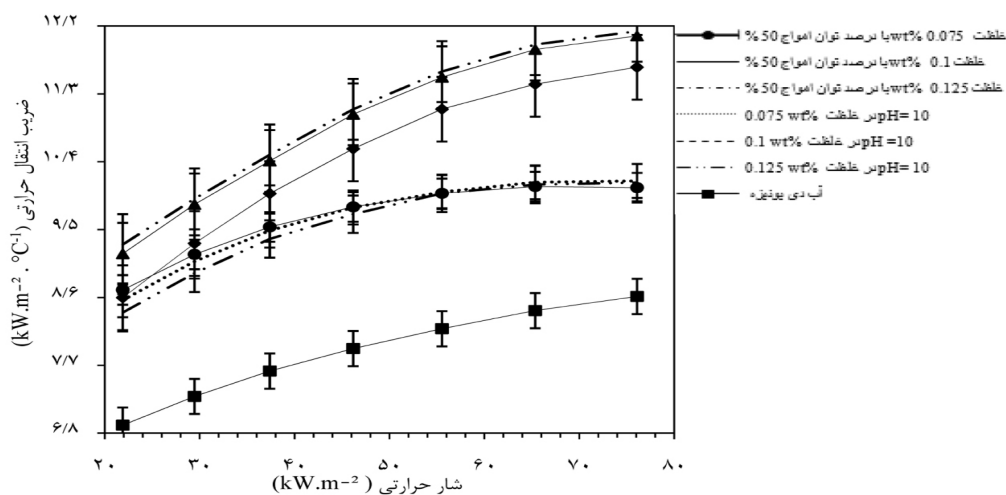
جهت بررسی افزایش رسوب که به‌صورت افزایش زبری بر سطح انتقال حرارت ظاهر می‌شوند و همچنین تأثیر امواج فراصوت بر کاهش آن‌ها، از تصاویر سه بعدی میکروسکوپ نیروی اتمی (AFM) استفاده شد. زبری‌ها به‌صورت پستی و بلندی در شکل ۱۳ نشان داده شده‌اند. همان‌طور که در شکل مشاهده می‌شود، با اعمال امواج فراصوت، زبری سطح انتقال حرارت کاهش یافته است. این روند کاهشی از توان ۲۵٪ تا ۵۰٪ می‌باشد. اما با اعمال توان بیشتر به ۷۵٪ بار دیگر افزایش زبری را به‌همراه داشته است این مسئله می‌تواند به‌علت برخورد بیشتر ذرات در اثر شتاب بیش از حد با انرژی بالا باشد. از طرفی شار حرارت بحرانی با استفاده از ارتعاشات امواج فراصوت و همچنین مقیاس pH، افزایش می‌یابد. امواج، حذف حباب‌های از سطح گرم را تسهیل می‌کنند [۵۷]. طبق شکل ۱۴ استفاده از امواج فراصوت باعث کاهش زیادی در



شکل ۱۳ تصاویر AFM از تاثیر امواج فراصوت بر کاهش رسوبات نانوذرات



شکل ۱۴ مقایسه دو روش امواج فراصوت و pH در کاهش درصد فوق اشباع سطح گرم کن نسبت به آب دی یونیزه



شکل ۱۵ مقایسه دو روش اعمال شده امواج فراصوت و pH در افزایش BHTC نسبت به آب دی یونیزه

از این جهت در این پژوهش از دو روش متداول در پایداری نانوسیال یعنی تغییر pH (۹/۵، ۱۰ و ۱۰/۵) و تابش امواج فراصوت (با درصد توان‌های ۲۵، ۵۰ و ۷۵) استفاده شده است. نتایج کار در زیر خلاصه شده است:

۱- استفاده از هر دو روش موجب افزایش ضریب انتقال حرارت به‌واسطه افزایش پایداری نانوذرات در سوسپانسیون شد.

۲- افزایش ضریب انتقال حرارت جوشش در غلظت ۰/۱۲۵ Wt.% برای امواج فراصوت با متوسط ۳۷/۴۸٪ در دامنه ۵۰٪ از توان و برای  $\text{pH} = ۱۰$  برابر ۲۲/۶۸٪ تعیین گردید.

۳- تغییر pH به‌دلیل کاهش کشش سطحی، باعث کاهش قطر جدایش حباب شده و کاهش قطر موجب کم شدن اختلاط در محلول در حال جوشش شد. از طرفی تغییر pH فقط در شارهای حرارتی پایین مناسب بوده و منجر به افزایش ضریب انتقال حرارت گردید.

۴- امواج فراصوت به‌دلیل اینکه ماده جدیدی به محلول در حال جوشش اضافه نشد و از طرفی به‌دلیل افزایش قطر جدایش حباب و همچنین کاهش ویسکوزیته منجر به افزایش ضریب انتقال حرارت در تمامی شارهای حرارتی گردید. همچنین این امواج تاثیر بسیار زیادی بر افزایش شار حرارتی بحرانی داشت.

از مهم‌ترین دلایل این افزایش می‌توان به ایجاد تلاطم، افزایش قطر جدایش حباب و مهم‌تر اینکه این افزایش بدون اضافه کردن هیچ ماده‌ی دیگری به محلول حاصل شده است. چرا که در تغییر pH محلول به‌واسطه اضافه کردن یک ماده دیگر به محلول اصلی موجب می‌شود که در معادلات مربوطه جهت محاسبه دینامیک حباب، پارامترهای جدیدی وارد حل معادلات شوند.

### نتیجه‌گیری

انتقال حرارت جوشش به‌عنوان یک روش تبادل حرارت کارآمد، به‌طور گسترده‌ای در زمینه‌های متعددی مانند خنک کننده دستگاه‌های الکترونیکی، چرخه قدرت، ذخیره سازی و انتقال مایعات برودتی در محفظه به‌کار گرفته می‌شود. در این مطالعه آزمایشگاهی به بررسی اثرات افزودن نانوذرات CuO به سیال با پایه آب دی یونیزه، جهت افزایش ضریب انتقال حرارت پرداخته شد. سیستم مورد آزمایش از یک ظرف شیشه‌ای با مقاومت حرارتی بالا که دارای یک گرم‌کن از جنس مس به شکل استوانه و با زبری ثابت  $0.84 \mu\text{m}$  انجام گرفت. نتایج نشان داد که افزودن نانوذرات باعث افزایش ضریب انتقال حرارت جوشش شد. اما این نانوذرات به‌علت عدم پایداری طولانی در سوسپانسیون، موجب رسوب بر روی سطح گرم‌کن شده و به مرور زمان باعث کاهش ضریب انتقال حرارت می‌شود.

### علائم و نشانه‌ها

$I^*$ : پارامتر رابطه کوتاتلاذره  
 $K$ : ضریب هدایت حرارتی ( $\text{W m}^{-1} \text{C}^{-1}$ )  
 $L$ : طول (m)  
 $M^*$ : پارامتر رابطه کوتاتلاذره  
 $n(p)$ : پارامتر رابطه گارنفلو  
 $P$ : فشار (Pa)  
 $Pr$ : عدد پранتل  
 $q$ : شار حرارتی (W)  
 $R_p$ : متوسط زبری سطح انتقال حرارت

$A$ : سطح مقطع ( $\text{m}^2$ )  
 $C_p$ : ظرفیت حرارتی ( $\text{J kg}^{-1} \text{C}^{-1}$ )  
 $D$ : قطر حباب (mm)  
 $F_{(pr)}$ : پارامتر رابطه گارنفلو  
 $g$ : گرانش  
 $H_{fg}$ : گرمای نهان تبخیر ( $\text{J kg}^{-1}$ )  
 $H$ : ضریب انتقال حرارت جوشش  
 $I$ : جریان (A)

## زیر نویس ها

0: پایه

b: حباب

d: قطر

c: بحرانی

I: مایع

s: سطح

sat: اشباع

th: گرما

v: بخار

W: وات

T: دما ( $^{\circ}\text{C}$ )

V: ولتاژ (V)

## نمادهای یونانی

 $\rho$ : ضریب نفوذ ( $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ ) $\rho$ : چگالی ( $\text{kg m}^{-3}$ ) $\delta$ : عمق نفوذ (mm) $\mu$ : ویسکوزیته ( $\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$ ) $\sigma$ : کشش سطحی ( $\text{N m}^{-1}$ ) $\pi$ : عدد پی $\phi$ : اختلاف بین فاز، ولتاژ و جریان $\Delta$ : اختلاف

## مراجع

- [1]. Sunil L, Kumarappa S, Hegde R (2016) Experimental studies on pool boiling heat transfer using alumina and graphene oxied nanofluid, International Research Journal of Engineering and Technology (IRJET) e-ISSN, 03, 01: 2395-0056
- [2]. Chung J, Chen T, Maroo S (2011) A review of recent progress on nano/micro scale nucleate boiling fundamentals, Frontiers in Heat and Mass Transfer (FHMT), 2: 2.
- [3]. Liu W, Yang Z, Zhang B, Lv P (2017) Experimental study on the effects of mechanical vibration on the heat transfer characteristics of tubular laminar flow, International Journal of Heat and Mass Transfer, 115: 169-79.
- [4]. Léal L, Miscevic M, Lavieille P, Amokrane M, Pigache F, Topin F, Nogarède B, Tadrist L (2013) An overview of heat transfer enhancement methods and new perspectives: Focus on active methods using electroactive materials, International Journal of Heat and Mass Transfer, 61: 505-24.
- [5]. Improvement of heat transfer by means of ultrasound: Application to a double-tube heat exchanger (2012) Ultrasonics Sonochemistry, 19: 1194-1200.
- [6]. Azmi W, Sharif M, Yusof T, Mamat R, Redhwan (2017) Potential of nanorefrigerant and nanolubricant on energy saving in refrigeration system—A review. Renewable and Sustainable Energy Reviews, 69: 415-28.
- [7]. Sheikholeslami M, Gorji-Bandpy M, Ganji D D (2015) Review of heat transfer enhancement methods: Focus on passive methods using swirl flow devices, Renewable and Sustainable Energy Reviews, 49: 444-69.
- [8]. Leong K, Ho J, Wong K (2017) A critical review of pool and flow boiling heat transfer of dielectric fluids on enhanced surfaces, Applied Thermal Engineering, 112: 999-1019.
- [9]. Yang L, Du K (2017) A comprehensive review on heat transfer characteristics of  $\text{TiO}_2$  nanofluids, International Journal of Heat and Mass Transfer, 108: 11-31.
- [10]. Amani M, Amani P, Kasaeian A, Mahian O, Wongwises S (2017) Thermal conductivity measurement of spinel-type ferrite  $\text{MnFe}_2\text{O}_4$  nanofluids in the presence of a uniform magnetic field, Journal of Molecular Liquids, 230: 121-8.
- [11]. Choi S U, Eastman J A (1995) Enhancing thermal conductivity of fluids with nanoparticles, Argonne National Lab., (ANL), Argonne, IL (United States).
- [12]. Timofeeva E V, Gavrilov A N, McCloskey J M, Tolmachev Y V, Sprunt S, Lopatina L M, Selinger J V (2007) Thermal conductivity and particle agglomeration in alumina nanofluids: experiment and theory, Physical Review E, 76: 061203.
- [13]. Hong K, Hong T K, Yang H S (2006) Thermal conductivity of Fe nanofluids depending on the cluster size of nanoparticles, Applied Physics Letters, 88: 031901.
- [14]. Vafaei S, Borca Tasciuc T (2014) Role of nanoparticles on nanofluid boiling phenomenon: Nanoparticle deposition, Chemical Engineering Research and Design, 92: 842-56.
- [15]. Das P K, Mallik A K, Ganguly R, Santra A K (2016) Synthesis and characterization of  $\text{TiO}_2$ -water nanofluids with different surfactants, International Communications in Heat and Mass Transfer, 75: 341-8.
- [16]. Xuan Y, Li Q (2000) Heat transfer enhancement of nanofluids, International Journal of heat and fluid flow, 21: 58-64.
- [17]. Wamkam C T, Opoku M K, Hong H, Smith P (2011) , Effects of pH on heat transfer nanofluids containing  $\text{ZrO}_2$  and  $\text{TiO}_2$  nanoparticles, Journal of Applied Physics, 109: 024305.

- [18]. Goudarzi K, Nejati F, Shojaeizadeh E, Yousef Abad S A (2015) Experimental study on the effect of pH variation of nanofluids on the thermal efficiency of a solar collector with helical tube, *Experimental Thermal and Fluid Science*, 60: 20-7.
- [19]. Sarafranz M, Hormozi F (2015) Pool boiling heat transfer to dilute copper oxide aqueous nanofluids, *International Journal of Thermal Sciences*, 90: 224-37.
- [20]. Peyghambarzadeh S, Hashemabadi S, Naraki M, Vermahmoudi Y (2013) Experimental study of overall heat transfer coefficient in the application of dilute nanofluids in the car radiator, *Applied Thermal Engineering*, 52: 8-16.
- [21]. Habibzadeh S, Kazemi-Beydokhti A, Khodadadi A A, Mortazavi Y, Omanovic S, Shariat Niassar M (2010) Stability and thermal conductivity of nanofluids of tin dioxide synthesized via microwave-induced combustion route, *Chemical Engineering Journal*, 156: 471-8.
- [22]. Mahbubul I, Shahrul I, Khaleduzzaman S, Saidur R, Amalina M, Turgut A (2015) Experimental investigation on effect of ultrasonication duration on colloidal dispersion and thermophysical properties of alumina–water nanofluid, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 88: 73-81.
- [23]. Ghotbinasab S, Khooshehchin M, Mohammadidoust A, Rafiee M, Salimi F, Fathi S (2021) Comparing the heat transfer coefficient of copper sulfate and isopropanol solutions in the pool boiling process: Bubble dynamic and ultrasonic intensification, *Chemical Engineering Science*, 116589.
- [24]. Yang L, Du K, Zhang X S, Cheng B (2011) Preparation and stability of  $Al_2O_3$  nano-particle suspension of ammonia–water solution. *Applied Thermal Engineering*, 31: 3643-7.
- [25]. Kim H, Kim Y, BH kang (2004) Enhancement of natural convection and pool boiling heat transfer via ultrasonic vibration, *Journal of Heat and Mass Transfer*, 47:2831-40.
- [26]. Khooshehchin M, Mohammadidoust A, Ghotbinasab S (2020) An optimization study on heat transfer of pool boiling exposed ultrasonic waves and particles addition, *International Communications in Heat and Mass Transfer*, 114: 104558.
- [27]. Taurozzi J S, Hackley V A, Wiesner M (2012) Preparation of nanoparticle dispersions from powdered material using ultrasonic disruption, *NIST Special Publication*, 1200: 1200-2.
- [28]. Rohsenow W M (1951) A method of correlating heat transfer data for surface boiling of liquids, Cambridge, Mass.: MIT Division of Industrial Cooperation, 5, 3-4.
- [29]. Kutateladze S S (1995) Heat transfer in condensation and boiling, *AEC-tr-3770*.
- [30]. Stephan K, Abdelsalam M (1980) Heat-transfer correlations for natural convection boiling, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 23: 73-87.
- [31]. Gorenflo D (1993) Pool Boiling, *VDI Heat Atlas*, VDI-Verlag, Dusseldorf, Germany.
- [32]. Fazel S A, Roumana S (2010) Pool boiling heat transfer to pure liquids, In: *WSEAS Conference*, USA.
- [33]. Fazel S A A (2017) A genetic algorithm-based optimization model for pool boiling heat transfer on horizontal rod heaters at isolated bubble regime, *Heat and Mass Transfer*, 53: 2731-2744.
- [34]. Lu L, Liu Z H, Xiao H S (2011) Thermal performance of an open thermosyphon using nanofluids for high-temperature evacuated tubular solar collectors: Part 1: Indoor experiment, *Solar Energy*, 85, 2: 379-387.
- [35]. Wong K V, Castillo M J (2010) Heat transfer mechanisms and clustering in nanofluids, *Advances in Mechanical Engineering*, 2: 795478.
- [36]. Xu G, Fu J, Dong B, Quan Y, Gu G (2019) A novel method to measure thermal conductivity of nanofluids, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 130: 978-988.
- [37]. Asadi A, Asadi M, Rezaniakolaei A, Aistrup L, Rosendahl L A, frand M, Wongwises S (2018) Heat transfer efficiency of  $Al_2O_3$ -MWCNT/thermal oil hybrid nanofluid as a cooling fluid in thermal and energy management applications: An experimental and theoretical investigation, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 117: 474-486.
- [38]. Esfahani N N, Toghraie D, Afrand M (2018) A new correlation for predicting the thermal conductivity of ZnO–Ag (50%–50%)/water hybrid nanofluid: an experimental study, *Powder Technology*, 323: 367-373.
- [39]. Hamid K A, Azmi W H, Nabil M F, Mamat R (2018) Experimental investigation of nanoparticle mixture ratios on  $TiO_2$ – $SiO_2$  nanofluids heat transfer performance under turbulent flow, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 118: 617-627.
- [40]. Yu W, Xie H, Chen L, Li Y (2010) Investigation on the thermal transport properties of ethylene glycol-based nanofluids containing copper nanoparticles, *Powder Technology*, 197, 3: 218-221.
- [41]. Kwark S M, Kumar R, Moreno G, Yoo J, You S M (2010) Pool boiling characteristics of low concentration nanofluids, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 53, 5-6: 972-981.
- [42]. Wong K V, Castillo M J (2010) Heat transfer mechanisms and clustering in nanofluids, *Advances in Mechanical Engineering*, 2: 1-9.
- [43]. Wang X j, Zhu D S (2009) Investigation of pH and SDBS on enhancement of thermal conductivity in



nanofluids, Chemical Physics Letters, 470, 1-3: 107-111.

[44]. Patra N, Ghosh P, Singh R S, Nayak A (2019) Flow visualization in dilute oxide based nanofluid boiling, International Journal of Heat and Mass Transfer, 135: 331-344.

[45]. Kim S J, Bang I C, Buongiorno J, Hu W (2007) Surface wettability change during pool boiling of nanofluids and its effect on critical heat flux, International Journal of Heat and Mass Transfer, 50, 19-20: 4105-4116.

[46]. Suriyawong A, Wongwises S (2010) Nucleate pool boiling heat transfer characteristics of  $\text{TiO}_2$ -water nanofluids at very low concentrations, Experimental Thermal and Fluid Science, 34, 8: 992-999.

[47]. Cieslinski J T, Kaczmarczyk T Z (2011) Pool boiling of water- $\text{Al}_2\text{O}_3$  and water-Cu nanofluids on horizontal smooth tubes, Nanoscale Research Letters, 6, 1: 220.

[48]. Umesh V, Raja B (2015) A study on nucleate boiling heat transfer characteristics of pentane and CuO-pentane nanofluid on smooth and milled surfaces, Experimental Thermal and Fluid Science, 64: 23-29.

[49]. Shahmoradi Z, Etesami N, Esfahany M N, (2013) Pool boiling characteristics of nanofluid on flat plate based on heater surface analysis, International Communications in Heat and Mass Transfer, 47: 113-120.

[50]. Shi M, Shuai M, Xuan Y (2006) Experimental study of pool boiling heat transfer for nano-particle suspensions on a plate surface, in International Heat Transfer Conference 13. Begel House Library, 7.

[51]. Chopkar M, Das S K, Manna I, Das P K (2008) Pool boiling heat transfer characteristics of  $\text{ZrO}_2$ -water nanofluids from a flat surface in a pool, Heat and Mass Transfer, 44, 8: 999-1004.

[52]. Narayan G P, Kanjirakat A, Sateesh G, Das S.K (2008) Effect of surface orientation on pool boiling heat transfer of nanoparticle suspensions, International Journal of Multiphase Flow, 34, 2: 145-160.

[53]. Piro I, Rohsenow W, Doerffer S (2004) Nucleate pool-boiling heat transfer. I: review of parametric effects of boiling surface, International Journal of Heat and Mass Transfer, 47: 5033-44.

[54]. Gerardi C, Buongiorno J, Hu L w, McKrell T (2010) Study of bubble growth in water pool boiling through synchronized, infrared thermometry and high-speed video, International Journal of Heat and Mass Transfer, 53: 4185-92.

[55]. Cao Z, Wu Z, Pham A D, Yang Y, Abbood S, Falkman P, Ruzgas T, Albèr C, Sundén B (2019) Pool boiling of HFE-7200 on nanoparticle-coating surfaces: Experiments and heat transfer analysis, International Journal of Heat and Mass Transfer, 133: 548-60.

[56]. Roostamzadeh A, Jafarpur K, Rad E G (2016) Numerical investigation of pool nucleate boiling in nanofluid with lattice Boltzmann method, Journal of Theoretical and Applied Mechanics, 54.

[57]. Li B, Han X, Wan Z, Wang X, Tang Y (2016) Influence of ultrasound on heat transfer of copper tubes with different surface characteristics in sub-cooled boiling, Applied Thermal Engineering, 92: 93-103.

[58]. Douglas Z, Boziuk T R, Smith M K, Glezer A (2012) Acoustically enhanced boiling heat transfer, Physics of Fluids, 24: 052105.

[59]. Iida Y, Tsutsui K (1992) Effects of ultrasonic waves on natural convection, nucleate boiling, and film boiling heat transfer from a wire to a saturated liquid, Experimental Thermal and Fluid Science, 5: 108-15.

# مدل سازی تخلخل با استفاده همزمان نشان گرهای لرزه ای و رخساره های الکتریکی در مخزن سروک در یکی از میادین نفتی ایران

ولی مهدی پور<sup>۱</sup>، احمد رضا ربانی<sup>۱\*</sup> و علی کدخدائی<sup>۲</sup>

۱- دانشکده مهندسی نفت، دانشگاه صنعتی امیرکبیر، تهران، ایران

۲- گروه زمین شناسی، دانشکده علوم، دانشگاه تبریز، تهران، ایران

تاریخ دریافت: ۱۴۰۰/۰۸/۲۳ تاریخ پذیرش: ۱۴۰۱/۰۲/۱۰

## چکیده

توزیع مناسب تخلخل مفید در مدل سازی استاتیک مخازن هیدروکربونی اهمیت به سزایی در محاسبات حجم سنجی، نحوه توزیع کیفیت مخزنی، مشخص کردن بخش های تولیدی و غیره دارد. استفاده از داده های ثانویه (به طور مثال داده های لرزه ای) و روش های مناسب توزیع زمین آماری می تواند در بهبود این فرآیند بسیار مهم باشد. در این مطالعه تخلخل مفید مربوط به مخزن ناهمگن سروک در یکی از میادین فروافتادگی دزفول به صورت سه بعدی با استفاده از نرم افزار پترل مدل گردید. بنابراین، ضمن در نظر گرفتن دانش زمین آمار در توزیع تخلخل، نقشه های روندی و مکعب لرزه ای جهت توزیع تخلخل مورد استفاده قرار گرفت. از این رو، نشان گر تضعیف موج لرزه ای، نشان گر پوش، نشان گر نرمی و نشان گر دامنه جذر میانگین مربعات به همراه نشان گر مقاومت صوتی از روی مکعب لرزه ای ساخته شد و سپس براساس آنها نقشه های روندی مناسب جهت توزیع تخلخل تهیه گردید. به منظور کنترل توزیع تخلخل در فضای سه بعدی مخزن، استفاده از روش های خوشه بندی و تعیین رخساره های الکتریکی مورد توجه قرار گرفت. در این مطالعه، رخساره های الکتریکی با داده های ورودی مشخص و استفاده از روش MRGC جهت تشخیص بخش های همگن مخزنی ساخته شد. براساس آنالیز رخساره های الکتریکی تعداد پنج رخساره تشخیص داده شد که از بین آنها دو رخساره دارای کیفیت مخزنی پایین و سه رخساره دارای کیفیت مخزنی نسبتاً خوبی بودند. توزیع سه بعدی تخلخل برای هر کدام از رخساره های الکتریکی متناظر، از طریق واریوگرافی مشروط گردید تا روند تغییرات تخلخل یا توزیع رخساره ها همخوانی داشته باشد. همچنین استفاده از نقشه های روندی تغییرات مقاومت صوتی منجر به توزیع صحیح رخساره های الکتریکی و آن هم به نوبه خود منجر به توزیع بهتر تخلخل گردید. به دلیل همبستگی بالای تخلخل با داده های مقاومت صوتی، از این داده به عنوان داده ثانویه با استفاده از روش کریجینگ همزمان مرتب (collocated co-kriging) جهت توزیع بهتر تخلخل استفاده گردید. براساس این مطالعه، بخش سروک پایینی کیفیت مخزنی بهتری نسبت به بخش سروک بالایی دارد که متاثر از گسترش رخساره های مخزنی با کیفیت مخزنی بالا است. این مطالعه نشان داد که میزان دقت توزیع سه بعدی تخلخل در صورت استفاده همزمان و تلفیقی از داده های لرزه ای و رخساره های الکتریکی همراه با استفاده از روش های زمین آماری مناسب زیاد شده و میزان عدم قطعیت در توزیع تخلخل کاهش می یابد.

**کلمات کلیدی:** ناهمگنی، تخلخل، رخساره الکتریکی، مقاومت صوتی، مدل سه بعدی

\*مسئول مکاتبات

آدرس الکترونیکی rabbani@aut.ac.ir

شناسه دیجیتال: (DOI:10.22078/PR.2022.4652.3089)

## مقدمه

تعیین و تشخیص میزان ناهمگنی و تهیه نقشه‌ها و مدل‌های ناهمگنی مخزنی در مطالعات مخزنی و پیش‌بینی خصوصیات دینامیکی مخزن نقش اساسی دارد. در این مطالعه به دلیل اهمیت تخلخل در مشخصه‌سازی مخزنی، محاسبات حجم سنجی و تعیین کیفیت مخزنی، استفاده از داده‌های لرزه‌ای و آنالیز رخساره‌های الکتریکی جهت توزیع تخلخل مورد بررسی قرار گرفتند. تخمین توزیع فضایی تخلخل در فضای مخزن همیشه مورد توجه محققین مختلف بوده است [۱]. شایان ذکر است، در مدل‌سازی تخلخل، در کنار استفاده از دانش زمین‌آمار، تعیین و تشخیص روند تغییرات آن بسیار حایز اهمیت می‌باشد. مدل‌سازی تخلخل با استفاده از نرم‌افزارهای مختلف از قبیل پترل، متلب، آر ام اس و غیره توسط محققین مختلف مورد بررسی قرار گرفته است. با استفاده از این نرم‌افزارها امکان مدل‌سازی ساختارهای پیچیده و نامنظم زمین‌شناسی به همراه توزیع خواص مخزنی در فضای سه‌بعدی (با استفاده از دانش زمین‌آمار) فراهم شده است [۲]. مطالعات صورت گرفته در زمینه مدل‌سازی تخلخل مشتمل بر استفاده از روش‌های مختلف توزیع و استفاده از الگوریتم‌های مختلف زمین‌آمار است [۳-۶] در تهیه روندهای حاکم بر تغییرات کیفیت مخزنی، داده‌های زمین‌شناسی و لرزه‌ای نقش اساسی دارد. تخلخل یکی از مهم‌ترین پارامترهای پتروفیزیکی است که در شناخت هرچه بهتر یک مخزن هیدروکربنی نقش مؤثری ایفا می‌کند. تخلخل را می‌توان با استفاده از آنالیز نگارهای پتروفیزیکی و مغزه‌ها و همچنین از طریق تلفیق داده‌های لرزه‌نگاری سه‌بعدی با نتایج آنالیزهای نگار و مغزه ارزیابی و محاسبه کرد. توزیع تخلخل تحت تأثیر ناهمگنی مخزن قرار می‌گیرد [۷]. بنابراین، استفاده از روش‌های خوشه‌بندی و تعیین رخساره‌های الکتریکی خاص برای شکستن فضای مخزن به زیرفضاهای همگن، به صورت

گسترده در حوزه علوم زمین مورد توجه و استفاده قرار گرفته است. استفاده از داده‌های رخساره‌ای و لرزه‌ای در مدل‌سازی تخلخل توسط محققین زیادی مورد بررسی قرار گرفته است [۸ و ۹]

به‌طور کلی، رخساره رسوبی عبارت از مجموعه‌ای از لایه‌های سنگ‌های رسوبی است، که تحت شرایط یکسان در محیط رسوبی ته‌نشین شده‌اند و دارای مشخصات سنگ‌شناسی و دیرینه‌شناسی مشابه می‌باشند. رخساره می‌تواند از دیدگاه زمین‌شناسی، ژئوشیمی، لرزه‌ای، دیانرژی، پتروفیزیکی و... مطرح شود. رخساره الکتریکی<sup>۱</sup> عبارت است از مجموعه‌ای از پاسخ‌های نگار<sup>۲</sup> که مشخص‌کننده یک لایه<sup>۳</sup> و یا به عبارت بهتر چینه<sup>۴</sup> بوده و باعث تشخیص آن از لایه‌های دیگر می‌گردد. روش‌ها و الگوریتم‌های متعددی نظیر MRG<sup>۵</sup>، AHC<sup>۶</sup> و SOM<sup>۷</sup> برای خوشه‌بندی وجود دارد. هر کدام از الگوریتم‌ها با استفاده از روش‌های محاسباتی مختص به خود تعداد خوشه‌ها را با استفاده از داده‌های پتروفیزیکی تعیین و تفکیک می‌کنند. این روش‌ها به خواص پتروفیزیکی مربوط می‌شوند، اما فاقد ارتباط مهم مابین قوانین زمین‌شناسی و فضایی می‌باشند [۸ و ۹]. به‌طور کلی، تعیین خوشه‌های مربوط به رخساره‌های الکتریکی با نظر کاربر و با استفاده از شکل نگارها یا ابر داده‌های اولیه و استفاده از الگوریتم‌های مختلف قابل حصول است [۱۱]. در مدل‌سازی استاتیک مخزنی، وجود داده‌های لرزه‌ای سه‌بعدی و نشان‌گرهای مناسب استخراج شده از آن به عنوان داده‌های ثانویه بسیار حایز اهمیت است. نشان‌گرهای لرزه‌ای توابع ریاضی مشتق شده از داده‌های لرزه‌نگاری هستند که در حوزه‌های زمان و فرکانس از داده‌های لرزه‌ای استخراج می‌شوند.

1. Electrofacies

2. log

3. Bed

4. Strata

5. Multi Resolution Graph Based Clustering

6. Ascendant Hierarchical Clustering

7. Self Organizing Map

### موقعیت میدان مورد مطالعه

میدان مورد مطالعه در بخش شمالی فروافتادگی دزفول قرار دارد. فروافتادگی دزفول از دیدگاه زمین شناسی نفت حائز اهمیت زیادی بوده و بخشی از یک پیش گودال و یک ناحیه ساختمانی در قسمت جنوب غربی تراسه زاگرس است. فروافتادگی دزفول به وسیله گسل بالارود در ناحیه شمال- شمال غرب و جبهه کوهستان در شمال شرق- شرق و گسل اصلی کازرون در شرق- جنوب شرق محدود گشته است. این منطقه دارای سنگ های منشاء فراوان، مخازن بسیار عالی و سنگ پوش مناسب است. در این میدان، سازند سروک مخزن اصلی محسوب می شود. در شکل ۱ موقعیت تقریبی میدان مورد مطالعه نشان داده شده است.

### چینه شناسی سازند سروک

سازند سروک مخزن اصلی میدان مورد مطالعه است. این سازند یکی از واحدهای کربناته گروه بنگستان به سن آلبین تا سنومانین به عنوان یکی از مهم ترین سنگ مخزن های کربناته ایران است که در حوضه رسوبی زاگرس تا حوضه خلیج فارس دارای گسترش زیادی است. سازند سروک اولین بار توسط جیمز و وایند در ایران به نام آهک سروک معرفی گردید [۱۷]. نام این سازند از تنگه سروک در کوه بنگستان در ناحیه خوزستان گرفته شده است. حد پایینی این سازند در میدان مورد مطالعه با سازند کژدمی تدریجی و همساز است و مرز بالایی آن با شیل های لافان فرسایشی است. وجود یک ناپیوستگی موازی به سن پس از سنومانین در میان سازند سروک سبب شده تا این سازند به سروک پایینی (سنومانین) و سروک بالایی (تورونین) تقسیم شود [۱۸].

این داده ها شامل زمان، دامنه، فرکانس و جذب هستند. این نشان گر ها ما را در شناخت بهتر خصوصیات یک مخزن همراهی می نمایند. در این مطالعه تعدادی نشان گر مورد استفاده قرار گرفت که به شرح زیر است:

**نشان گر وارون سازی لرزه ای<sup>۱</sup>** یا برگردان لرزه ای روشی است که باعث می شود براساس مدل های لرزه ای اولیه و موجک های تخمین زده شده، مدل مقاومت صوتی نزدیک به مدل واقعی زمین را تخمین بزند. مقاومت صوتی به عنوان یک نشان گر لرزه ای عمل می کند [۱۲].

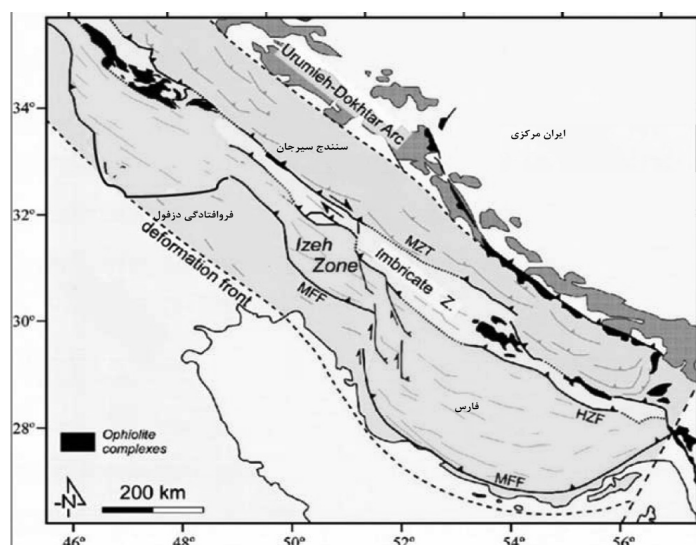
**نشان گر تضعیف موج لرزه ای<sup>۲</sup>** یک خاصیت ذاتی برای سنگ ها است که باعث اتلاف انرژی موج لرزه ای هنگام عبور از لایه های زیرسطحی و در نتیجه باعث کاهش تضعیف دامنه موج لرزه ای می شود [۱۳]. میزان تضعیف موج لرزه ای معمولاً با اندازه گیری فاکتور کیفیت سنگ<sup>۳</sup> (Q) که عبارت است از نسبت انرژی ذخیره شده به انرژی تلف شده در هر دوره تناوب، محاسبه می شود [۱۴].

**نشان گر پوش لرزه ای<sup>۴</sup>** از تریس پیچیده سیگنال لرزه ای که برای برجسته سازی ویژگی های لرزه ای استفاده شده، محاسبه می شود. همچنین نشان دهنده انرژی سیگنال است و از نظر بزرگی با ضریب بازتاب متناسب است.

**نشان گر دامنه جذر میانگین مربعات<sup>۵</sup>** از نشان گر های لرزه ای حجمی بعد از انباش بر پایه دامنه است و تغییرات چینه شناسی را نشان می دهد. این نشان گر همانند نسخه ملایم شده نیروی بازتابی است و در مواردی نظیر آنومالی های دامنه در داده لرزه ای به کارگیری می شود.

**نشان گر نرمی<sup>۶</sup>** عبارت است از تقسیم رد لرزه<sup>۷</sup> پوش لرزه ای بر مجذور میانگین فرکانس است. این نشان گر به منظور تشخیص نقاط مطلوب جاهایی که نفت یا گاز حضور دارند و باعث بهبود تصویر توالی های دانه درشت (ماسه سنگ) می شوند طراحی شده است [۱۵].

1. Inversion
2. Seismic – Attenuation
3. Rock Quality Factor
4. Envelope Attribute
5. RMS
6. Sweetness
7. Seismic Trace



شکل ۱ محدوده تقریبی میدان مورد مطالعه در فروافتادگی دزفول شمالی [۱۶]

داده‌های سطوح عمقی تفسیر شده، داده‌های گسل‌های تفسیر شده، داده‌های مکعب لرزه‌ای، نگارهای پتروفیزیکی خام (از قبیل نگارهای پرتو گاما، نوترون، چگالی، صوتی، مقاومت و ...) و تفسیر شده (از قبیل تخلخل مفید، اشباع آب، حجم کانی‌های و ...)، مشخصات چاه‌ها (مختصات سرچاهی، اعماق میز دوار از سطح آزاد دریا، داده‌های انحراف مسیر چاه‌ها)، اعماق سرسازندها و سرزون‌های مربوط به بیست چاه حفاری شده در این میدان استفاده گردید.

### ارائه و تحلیل نتایج

#### تعیین رخساره‌های الکتریکی مخزن مورد مطالعه

در این مطالعه، خوشه‌سازی و تعیین رخساره‌های الکتریکی با استفاده از ماژول FACIMAGE™ نرم‌افزار ژئولاگ انجام گرفت. از این رو، پس از آزمودن روش‌های مختلف در نهایت روش خوشه‌سازی چند تفکیکی بر پایه گراف MRGC برای تعیین تعداد رخساره‌های الکتریکی بهینه انتخاب گردید. در این روش داده‌های ورودی اعم از چندین نگار پتروفیزیکی پس از کنترل کیفی جهت خوشه‌بندی استفاده گردید. به‌طور کلی، خوشه‌سازی براساس MRGC یک روش آماری غیرپارامتریک است و برخلاف سایر روش‌ها، مشکل وابستگی به بعد را از بین می‌برد.

سازند آهکی سروک در زاگرس معمولاً با دو رخساره کم عمق و عمیق مشخص می‌شود. به لحاظ سنی سازند سروک از آلبین تا تورونین گسترش دارد [۱۹]. در میدان مورد مطالعه، این سازند عمدتاً دارای لیتولوژی کربناته است و از توالی آهک‌های نازک لایه تا متوسط لایه، آهک توده‌ای و آهک چرت دار تشکیل شده است. در این میدان، مخزن سروک (با ضخامت حدود ۶۰۴ m) با توجه به قرارگیری بخش شیل احمدی در بخش میانی (با ضخامت حدود ۳۳ m)، به دو بخش سروک بالایی (با ضخامت حدود ۳۰۶ m) و سروک پایینی (با ضخامت حدود ۲۶۵ m) تقسیم شده است.

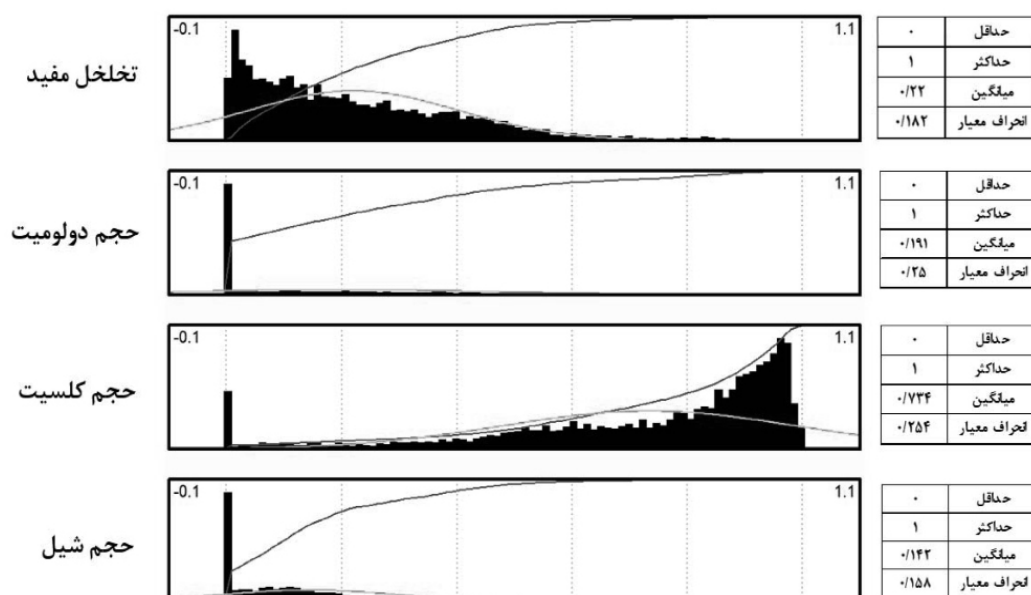
#### روش و داده‌های مورد استفاده و مراحل تحقیق

در این مطالعه از نرم‌افزارهای ژئولاگ و پترل استفاده گردید. نخست با استفاده از نرم‌افزار Geolog، آنالیز رخساره‌ای پتروفیزیکی با روش خوشه‌سازی MRGC انجام گردید. سپس رخساره‌های حاصل جهت استفاده در مدل‌سازی رخساره‌ای وارد نرم‌افزار پترل گردید. در این نرم‌افزار با ساخت نشان‌گرهای لرزه‌ای متعدد تلاش گردید توزیع تخلخل به‌عنوان تابعی از تغییرات رخساره‌های الکتریکی و لرزه‌ای انجام گیرد. به‌منظور ساخت مدل استاتیک از



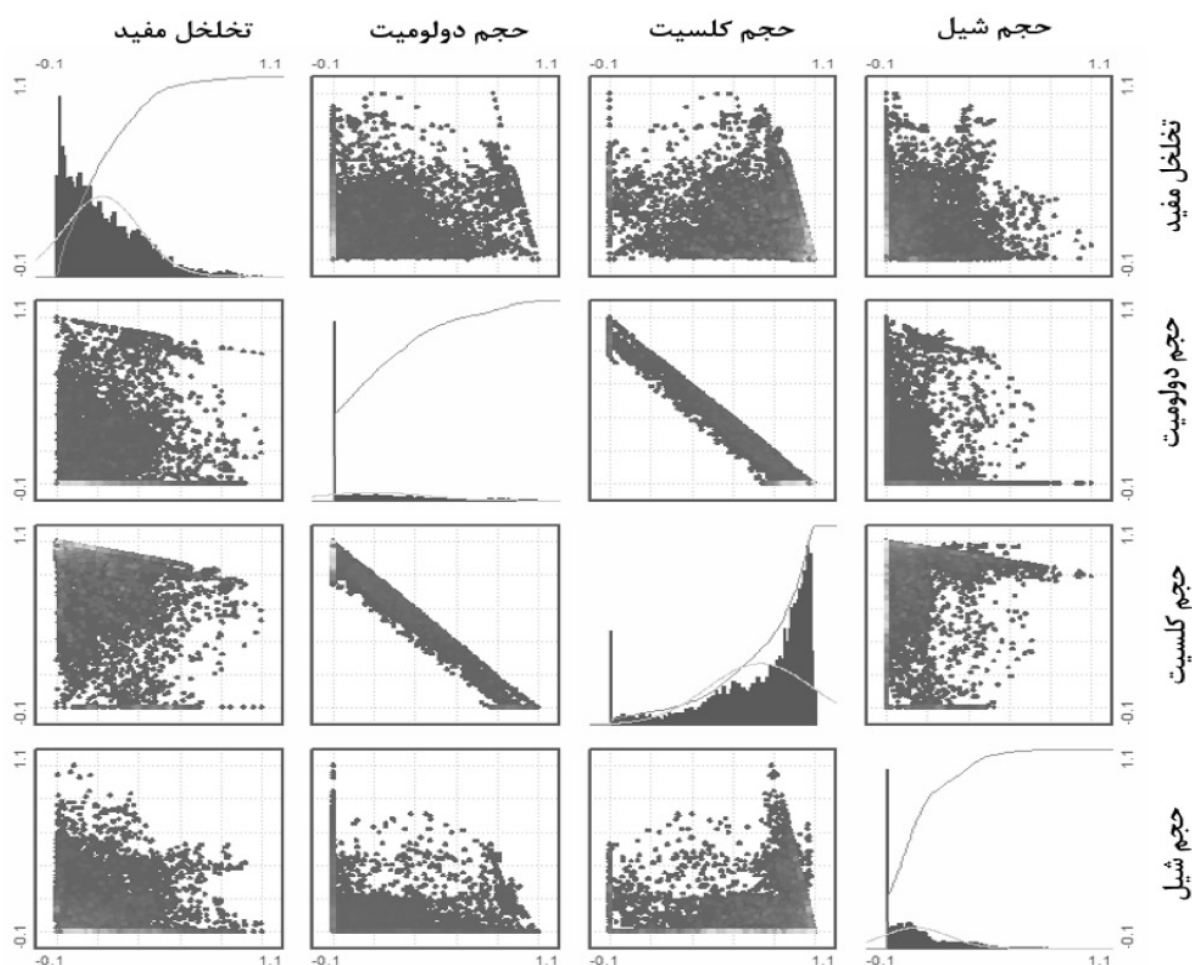
مخزنی سازندها تعیین می شوند [۲۰]. در شکل ۲ هیستوگرام های مربوط به نگارهای پتروفیزیکی تفسیر شده مورد استفاده در خوشه سازی نشان داده شده است. در مرحله بعد، داده های ورودی پس از بررسی و مشاهده نمودارهای مقاطع مربوطه (به منظور بررسی ارتباط داده های ورودی و میزان تفکیک رخساره ها) آموزش داده شدند (شکل ۳). پس از آموزش داده ها با استفاده از روش خوشه بندی تفکیکی گرافیکی MRGC، تعداد خوشه های بهینه مشخص گردید. این روش در مقایسه با سایر الگوریتم های خوشه بندی دارای کیفیت بهتری در تفکیک داده ها است [۲۱]. در این روش تعیین تعداد حداقل و حداکثر خوشه ها الزامی است. بنابراین، حداقل تعداد رخساره ها بر اساس تعداد کانی های حاصل از تفسیر لیتولوژی، سه رخساره (کلسیت، دولومیت، شیل) و حداکثر تعداد آن ۲۰ رخساره انتخاب گردید. بر این اساس، خوشه بندی با تعداد رخساره ۱۷ تایی از بین خوشه بندی های متعدد انتخاب گردید.

و اطلاعات مفیدی در مورد رخساره های زمین شناسی از ساختار خود داده به دست می آورد. این روش برای آنالیز ساختارهای پیچیده و دسته بندی طبیعی گروه های داده ها در شکل ها، اندازه ها و چگالی های متفاوت بسیار مناسب بوده و با شناسایی رخساره های رسوبی در یک توالی مخزنی، دید بهتری نسبت به شکل مخزن، پراکندگی خصوصیات پتروفیزیکی و سنگ شناسی سازند مخزنی و در نهایت، واحدهای جریانی موجود در آن سازند مخزنی پیدا می شود. برای تعیین رخساره های الکتریکی ابتدا داده های ورودی و مبنا انتخاب گردید. نگارهای پتروفیزیکی که بیشترین ارتباط را با خوشه بندی مورد نظر ما داشتند مورد بررسی قرار گرفتند و در نهایت تصمیم بر این شد که نگارهای تفسیر شده تخلخل، حجم شیل، حجم کانی دولومیت و حجم کلسیت به عنوان داده های ورودی انتخاب گردند. شناخت نوع لیتولوژی، محاسبه حجم شیل<sup>۱</sup>، میزان تخلخل کل<sup>۲</sup>، تخلخل مؤثر<sup>۳</sup>، اشباع آب<sup>۴</sup> مهم ترین پارامترهایی هستند که در ارزیابی پتروفیزیکی جهت پی بردن به کیفیت



شکل ۲ هیستوگرام توزیع داده های ورودی نرمال شده با روش MRGC جهت خوشه بندی

1. Shale volume (VSH)
2. Total Porosity (PHIT)
3. Effective Porosity (PHIE)
4. Water Saturation (Sw)



شکل ۳ نمودار متقاطع ماتریسی داده‌های ورودی

بررسی و مقایسه خوشه‌ها نشان داد که امکان تلفیق خوشه‌ها و کاهش آن به ۵ خوشه وجود دارد. بنابراین، پس از بررسی خوشه‌بندی ۱۷ رخساره‌ای، این نتیجه حاصل شد که بعضی از این دسته‌بندی‌ها، از لحاظ سنگ‌شناسی و کیفیت مخزنی بسیار شبیه به هم می‌باشند (شکل ۴).

از این رو دسته‌های مشابه با یکدیگر ترکیب شدند و در نهایت پس از ادغام آنها خوشه‌بندی ۱۷ رخساره‌ای حاصل از روش MRGC به ۵ رخساره تبدیل شد. در شکل ۵ محدوده تغییرات تخلخل در هر رخساره نشان داده شده است. مشخصات پنج رخساره الکتریکی حاصل از روش MRGC به شرح زیر است.

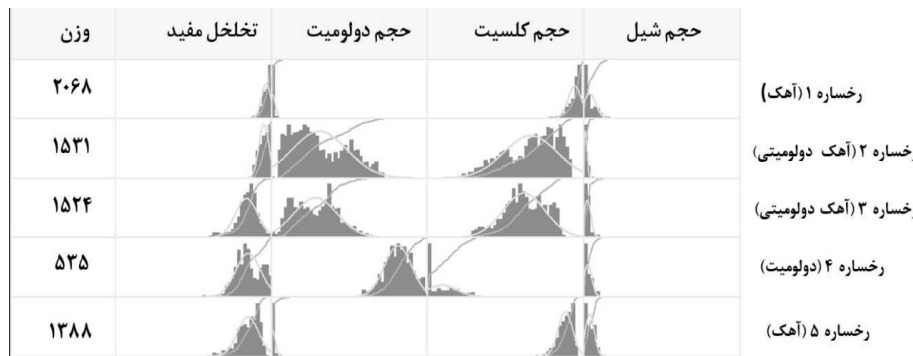
رخساره-۱: این رخساره با درصد گاما و میزان حجم شیل کمتر عمدتاً آهکی بوده و از ادغام ۶

رخساره الکتریکی در خوشه‌بندی ۱۷ تایی حاصل شده است (جدول ۱). رخساره-۱ دارای تخلخل ناچیز و کمتر از حد برش (حدود ۰.۲٪) عملاً فاقد کیفیت مخزنی است.

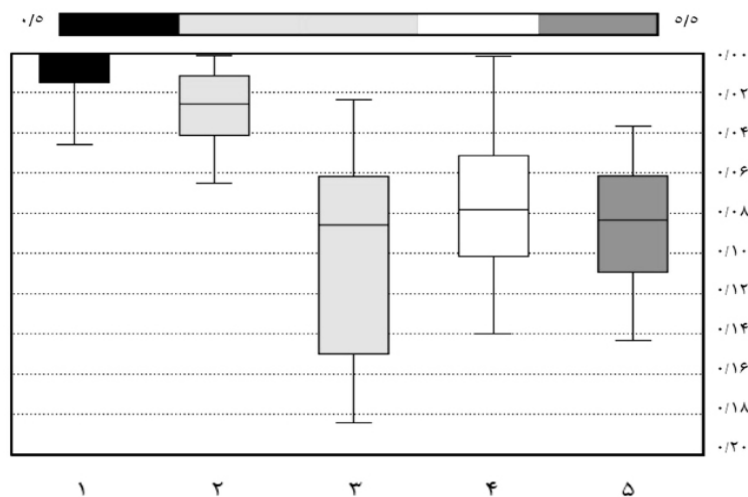
رخساره-۲: این رخساره از جنس آهک دولومیتی بوده و از ادغام سه رخساره در خوشه‌بندی ۱۷ رخساره‌ای حاصل گردید. این رخساره همانند رخساره با میانگین تخلخل ۰.۲٪ و کمتر از حد برش فاقد کیفیت مخزنی می‌باشد و صرفاً به دلیل وجود دولومیت از آن تفکیک شده است (جدول ۱).

رخساره-۳: این رخساره از جنس آهک دولومیتی بوده و از ادغام چهار رخساره در خوشه‌بندی ۱۷ رخساره‌ای حاصل گردیده است. این رخساره با میانگین تخلخل ۰.۸٪ کیفیت مخزنی بالایی داشته و از رخساره ۲ قابل تفکیک می‌باشد (جدول ۱).

بررسی و مقایسه خوشه‌ها نشان داد که امکان تلفیق خوشه‌ها و کاهش آن به ۵ خوشه وجود دارد. بنابراین، پس از بررسی خوشه‌بندی ۱۷ رخساره‌ای، این نتیجه حاصل شد که بعضی از این دسته‌بندی‌ها، از لحاظ سنگ‌شناسی و کیفیت مخزنی بسیار شبیه به هم می‌باشند (شکل ۴).



شکل ۴ هیستوگرام و دامنه تغییرات داده‌های ورودی توزیع داده‌های ورودی با روش MRGC در هر رخساره و روند تلفیق ۱۷ رخساره‌ای به ۵ رخساره‌ای



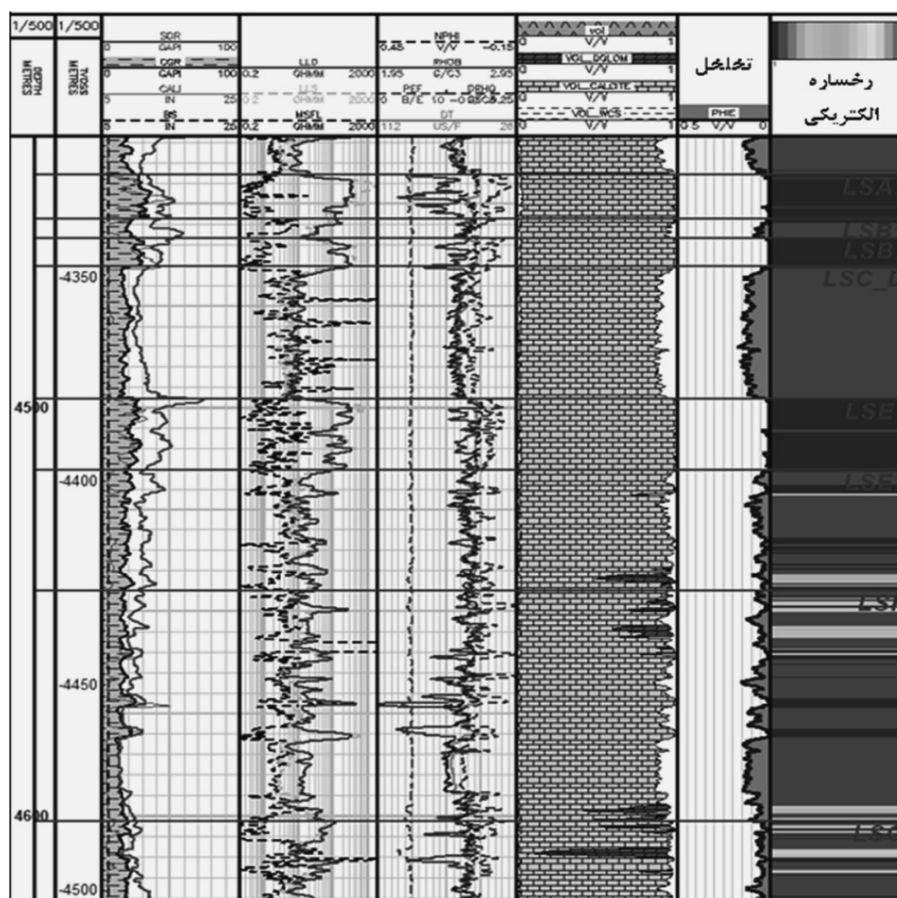
شکل ۵ هیستوگرام جعبه‌ای تغییرات تخلخل در هر رخساره

جدول ۱ میانگین داده‌های ورودی در هر رخساره

رخساره	تخلخل مفید	حجم دولومیت	حجم کلسیت	حجم شیل
رخساره ۱ (آهک کم تخلخل)	۰/۰۲	۰	۰/۹۴	۰/۰۴
رخساره ۲ (آهک دولومیتی کم تخلخل)	۰/۰۲	۰/۳۱	۰/۶۶	۰/۰۱
رخساره ۳ (آهک دولومیتی با تخلخل بالا)	۰/۰۸	۰/۲۸	۰/۶۲	۰/۰۲
رخساره ۴ (دولومیت)	۰/۰۷	۰/۸۱	۰/۰۹	۰/۰۲
رخساره ۵ (آهک با تخلخل بالا)	۰/۰۸	۰/۰۱	۰/۸۸	۰/۰۴

رخساره ۴ تفکیک می‌گردد (جدول ۱). در شکل ۶ رخساره‌های الکتریکی ایجاد شده در یک پنجره چیدمانی<sup>۱</sup> در یکی از چاه‌های میدان به‌همراه داده‌های سنگ‌شناسی، کیفیت مخزنی (تخلخل) نمایش داده شده است.

رخساره-۴: این رخساره دولومیتی است و با میانگین تخلخل (۰/۷) دارای کیفیت مخزنی نسبتاً خوبی است (جدول ۱).  
رخساره-۵: این رخساره عمدتاً آهکی بوده و با میانگین تخلخل (۰/۷) دارای کیفیت مخزنی نسبتاً خوبی است و به دلیل اختلاف لیتولوژی از



شکل ۶ نمایش رخساره‌های الکتریکی به همراه نگار تخلخل، نگارهای لیتولوژی و نگارهای خام

### ساخت نشان‌گرهای لرزه‌ای

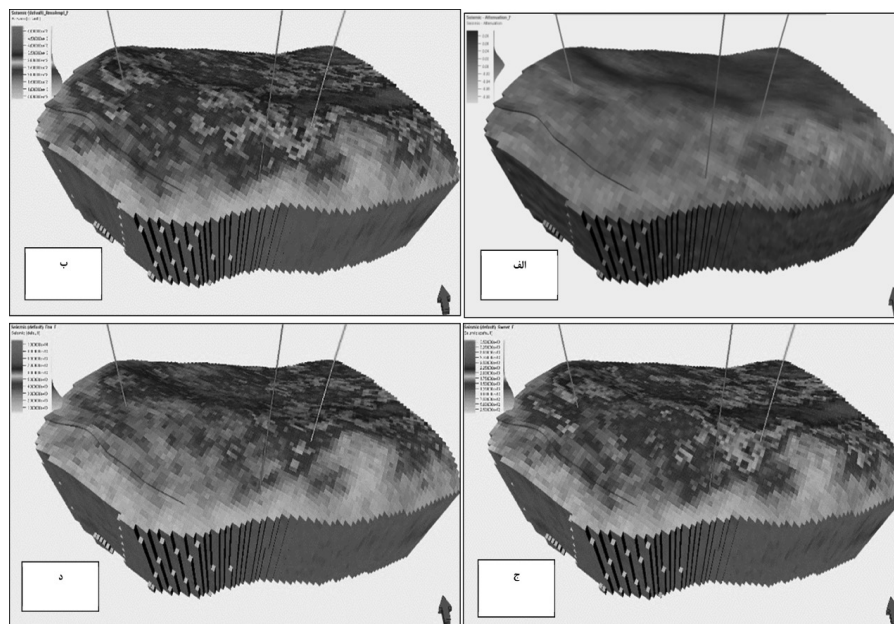
در این مطالعه، نخست با استفاده از نرم‌افزار پترل تعدادی نشان‌گر لرزه‌ای که به نوعی با توزیع تخلخل ارتباط داشتند از روی داده‌های مکعب لرزه‌ای با استفاده از ماژول ساخت نشان‌گرهای حجمی<sup>۱</sup> تهیه گردید. نشان‌گر تضعیف موج لرزه‌ای، نشان‌گر پوش لرزه‌ای و نشان‌گر دامنه RMS به همراه نشان‌گر مقاومت صوتی پس از تهیه توسط شبکه عصبی پترل به یک نشان‌گر تبدیل شدند تا نشان‌گر نهایی تلفیقی از اثرات هر کدام از آنها باشد (شکل ۷). ادغام این نشان‌گرها به یک نشان‌گر نماینده از طریق شبکه عصبی نرم‌افزار پترل انجام گردید. از مدل حاصل برای هر دو بخش سروک بالایی و سروک پایینی نخست نقشه میانگین تهیه گردید و در نهایت پس از نرمال کردن به نقشه‌های روندی تبدیل گردید. با توجه به رابطه عکس

نشان‌گر مقاومت صوتی با تخلخل، روند تغییرات این نقشه‌ها ارتباط عکس با روند توزیع تخلخل دارد، به‌طوری‌که افزایش آن نشان‌دهنده کاهش تخلخل و کاهش آن نشان‌دهنده وجود بخش‌های با کیفیت مخزنی بالا می‌باشد. این نقشه‌های روندی جهت توزیع رخساره‌های الکتریکی مورد استفاده قرار گرفت.

### مدل‌سازی خواص مخزنی

نرم‌افزارهای مدل‌سازی استاتیک نظیر پترل یک دید سه‌بعدی از زمین‌شناسی و ساختمان مخزن و نیز نحوه توزیع پارامترهای مخزنی به کاربر ارائه داده و امکان محاسبه حجم مخزن را فراهم می‌کند. به‌طور کلی، مدل‌سازی استاتیک مخزن شامل ایجاد مدل ساختمانی<sup>۲</sup> و مدل خواص مخزن و نهایتاً حجم سنجی و آنالیز عدم قطعیت است.

1. Volume Attribute  
2. Structural Modeling



شکل ۷ نشان گرهای لرزه‌ای (الف) نشان گر تضعیف موج لرزه‌ای، (ب) نشان گر دامنه جذر میانگین مربعات (ج) نشان گر نرمی و (د) نشان گر پوش لرزه‌ای

آنها حذف می‌گردد و سپس در سه جهت اصلی، فرعی و عمودی واریوگرافی انجام گردید. واریوگرام، تغییرپذیری داده‌ها را با افزایش فاصله نشان می‌دهد که یک محور آن تغییرپذیری واریانس و محور دیگر فاصله است. در توزیع خواص مخزنی در مخازن هیدروکربنی واریوگرافی به صورت افقی (در دو جهت) و عمودی انجام می‌شود. واریوگرام از مقداری مخالف صفر شروع شده و به اندازه دامنه تأثیر<sup>۶</sup> افزایش می‌یابد و در نهایت به مقدار ثابتی به نام سقف<sup>۷</sup> می‌رسد.

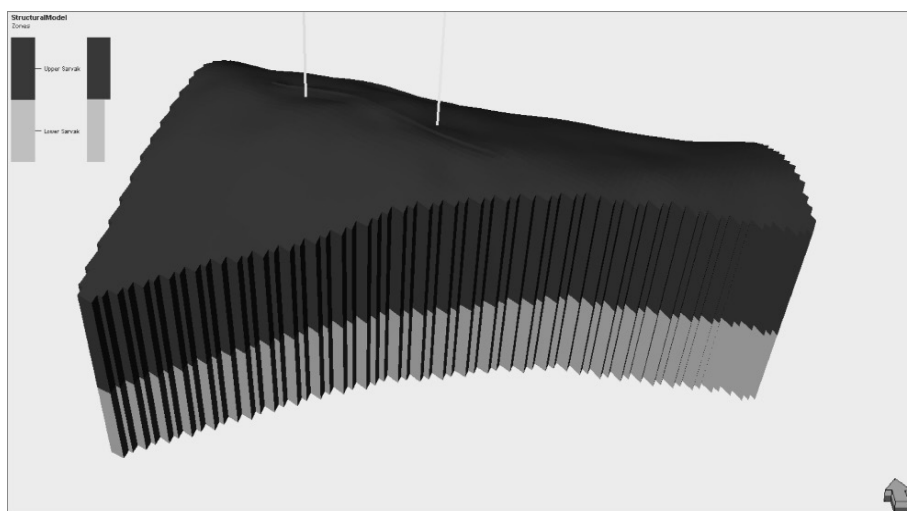
#### مدل سازی رخساره‌های الکتریکی و تخلخل

مدل سازی رخساره‌ای<sup>۸</sup> پس از ساخت مدل ساختمانی و پیش از مدل سازی خواص پتروفیزیکی انجام می‌گیرد. داده‌های رخساره‌های الکتریکی پیش از مدل سازی برحسب فراوانی رخساره<sup>۹</sup> درشت نمایی شده است.

انجام مدل سازی استاتیک مخزنی معمولاً با آماده کردن داده‌های مختلف با فرمت‌های متناسب و وارد کردن آنها به نرم افزار شروع می‌شود پس از وارد نمودن داده‌های مختلف، ساخت مدل ساختمانی آغاز می‌گردد. فرآیند مدل سازی ساختمانی شامل مراحل مدل سازی گسل، ساخت مدل ژئوسلولار سه بعدی<sup>۱</sup>، ساخت افق‌های مخزنی<sup>۲</sup>، ساخت زون‌ها<sup>۳</sup> و لایه بندی<sup>۴</sup> است [۲۲]. در این مطالعه، مدل ساختمانی با شبکه بندی ۱۰۰×۱۰۰ ساخته شد و مدل سازی افق‌ها با استفاده از نقشه‌های سطوح عمقی انجام گرفت (شکل ۸). پس از ساخت مدل ساختمانی، داده‌های رخساره الکتریکی و تخلخل به اندازه سلول‌های شبکه درشت مقیاس (میانگین گیری) شدند [۲۳]. پس از درشت نمایی این نگارها، آنالیز آماری<sup>۵</sup> داده‌ها صورت می‌گیرد. آنالیز آماری داده‌ها یک مرحله مهم در مدل سازی مخزن است که در کنترل کیفیت داده‌ها، بررسی روند آنها و آماده سازی داده‌های ورودی برای مدل سازی پتروفیزیکی و رخساره‌ها کمک فراوانی می‌نماید. بنابراین داده‌ها ابتدا درون نرم افزار پترل به صورت نرمال درآمده و روند ممکن در

1. Gridding
2. Make Horizon
3. Zonation
4. Layering
5. Data Analysis
6. Range
7. Sill
8. Facies Modelling
9. Most of





شکل ۸ مدل ساختمانی مخزن سروک در میدان مورد مطالعه

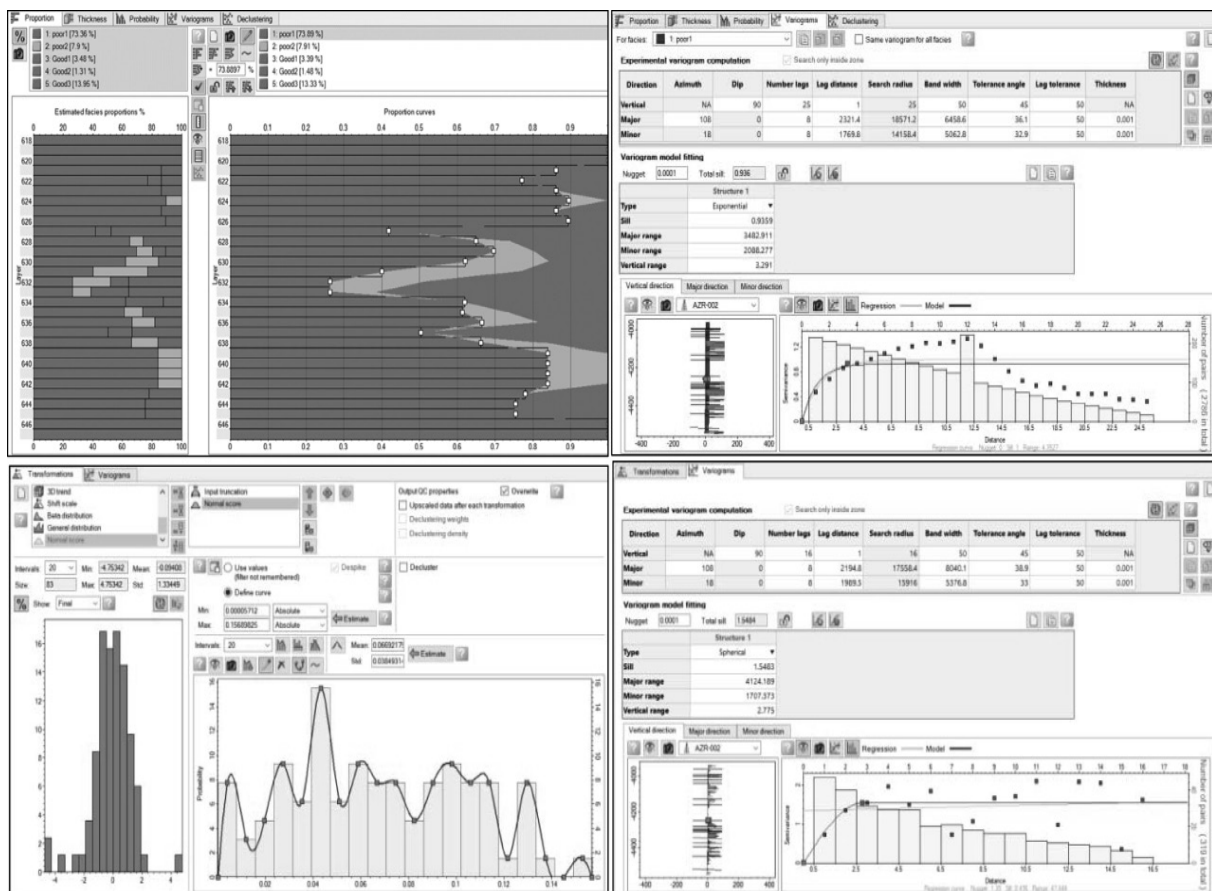
هر کدام از زون‌های مخزنی نقشه روندی براساس تغییرات مقاومت صوتی و نشان‌گر حاصل از تجميع ۴ نشان‌گر ساخته شده، تهیه گردید. این روندها برای توزیع هر کدام از رخساره‌ها به صورت سه‌بعدی مورد استفاده قرار گرفتند. همچنین توزیع هر کدام از این رخساره‌ها به تخلخل لینک گردید تا روند تغییرات رخساره‌ها با تخلخل هم‌خوانی داشته باشند. از این رو، هر کدام از کدهای رخساره‌ای به صورت جداگانه مورد آنالیز واریوگرافی قرار گرفت تا بتوان با آنالیز واریوگرافی تخلخل مربوطه امکان تبعیت توزیع تخلخل از توزیع رخساره‌های الکتریکی فراهم گردد (شکل ۹). شایان ذکر است، استفاده از نقشه‌های روندی تغییرات مقاومت صوتی منجر به توزیع صحیح رخساره‌های الکتریکی و آن هم به نوبه خود منجر به توزیع بهتر تخلخل می‌گردد.

#### مدل‌سازی تخلخل

استفاده از مدل رخساره الکتریکی که با استفاده از نقشه‌های روندی حاصل از مقاومت صوتی تهیه گردیده است.

سپس در بخش آنالیز داده‌ها واریوگرافی می‌شوند. در مدل‌سازی رخساره‌ای گسسته، توزیع رخساره‌ها با استفاده از روش‌های زمین آماری قطعی<sup>۱</sup> و تصادفی یا آماری<sup>۲</sup> و یا شبیه‌سازی انجام می‌گیرد. در روش قطعی فقط یک خروجی از مدل‌سازی حاصل می‌گردد، ولی در روش توزیع تصادفی ممکن است برحسب شرایط داده‌ها مدل ایجاد گردد و سپس از آنها میانگین‌گیری شود. از ویژگی‌های روش تصادفی این است که مدل واقعی‌تر از ناهمگنی مخزن ایجاد می‌کند [۲۴]. روش‌های شبیه‌سازی زیادی وجود دارد که می‌توان به شبیه‌سازی شاخص ترتیبی<sup>۳</sup> و شبیه‌سازی گوسین منقطع<sup>۴</sup> اشاره کرد. در این روش‌ها از واریوگرام برای مدل‌سازی استفاده می‌شود. مدل‌های رخساره‌ای حاصل جهت کنترل توزیع خواص پتروفیزیکی و تاثیر زمین‌شناسی در توزیع زمین آماری آنها مورد استفاده قرار می‌گیرند. براساس آنالیز رخساره‌های الکتریکی که بیان گردید، رخساره‌های ساخته شده برحسب میزان تغییرات دولومیت و تخلخل به ۵ رخساره تفکیک شدند. از بین آنها ۲ رخساره کیفیت پایین و سه رخساره کیفیت خوبی داشتند. رخساره‌های با تخلخل خوب با مقدار مقاومت صوتی پایین و رخساره‌های بد دارای تخلخل کمتر با مقاومت صوتی بالا تطابق دارند. بنابراین برای

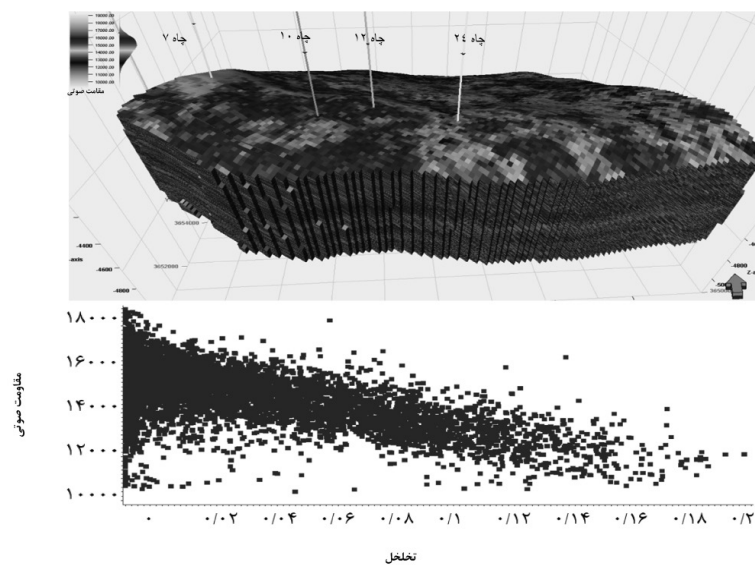
1. Deterministic
2. Stochastic
3. Sequential Indicator Simulation (SIS)
4. Truncated Gaussian Simulation (TGS)



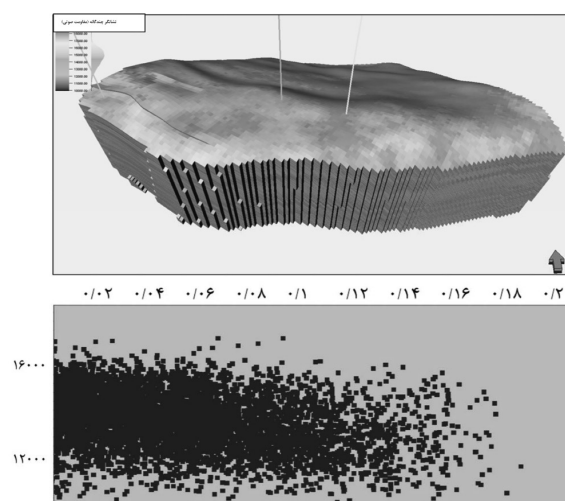
شکل ۹ تنظیمات مربوط به واریوگرافی نگارهای رخساره الکتریکی و تخلخل

مقاومت صوتی که نسبت به داده‌های نگار تخلخل چاه دارای حجم بیشتر اما دقت کمتری می باشد، منجر به توزیع صحیح و قابل اعتماد تخلخل شده و از میران عدم قطعیت توزیع تخلخل می‌کاهد. شایان ذکر است میزان همبستگی تخلخل با نشان‌گر ساخته شده از مجموع نشان‌گرها ۴۵٪ بوده است که در شکل ۱۱ نشان داده شده است. به‌طور کلی، می‌توان گفت مسیری که برای مدل‌سازی تخلخل استفاده گردید هم به‌صورت افقی از روند تغییرات نشان‌گرهای لرزه‌ای و هم به‌صورت سه‌بعدی از روند تغییرات مقاومت صوتی استفاده می‌کند. نتیجه این روش کاهش مقدار عدم قطعیت در خارج از دامنه واریوگرافی و حصول اطمینان بیشتر از صحت توزیع تخلخل می باشد. مدل تخلخل با استفاده از روش زمین آماری تصادفی GRFS توزیع گردید (شکل ۱۲).

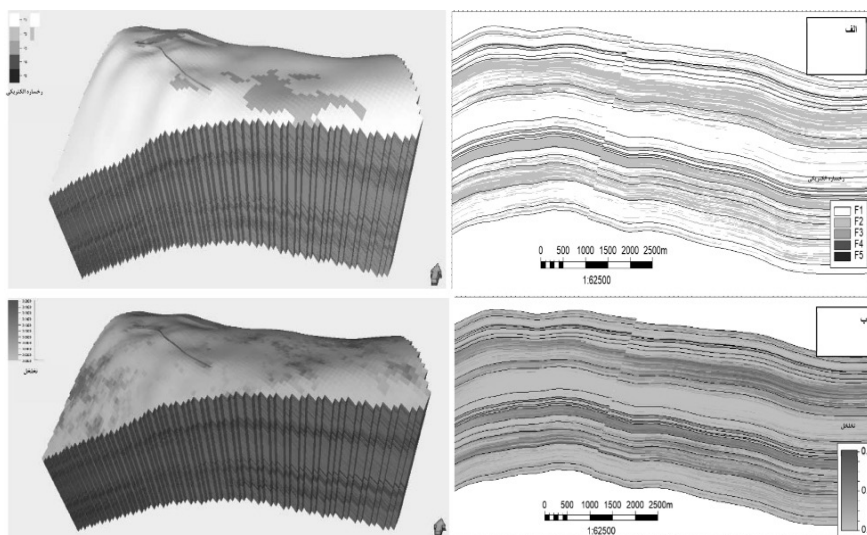
به‌دلیل استفاده هم‌زمان از داده‌های پتروفیزیکی و لرزه‌ای (به‌صورت نقشه‌های روندی) اهمیت فراوانی در کاهش عدم قطعیت مدل تخلخل دارد. در واقع هدف از مدل‌سازی تخلخل این است تا این خاصیت مخزنی را بین چاه‌های موجود طوری توزیع کنیم که ضمن حفظ ناهمگنی مخزن در توافقی با داده‌های چاه باشند. از آنجا که در بخش آنالیز واریوگرافی، توزیع تخلخل متأثر از توزیع رخساره‌های الکتریکی بود، لذا توزیع تخلخل در فضای سه‌بعدی مدل به نوعی متأثر از تغییرات مقاومت صوتی هم بوده است. با توجه به یکسان بودن روند تغییرات نشان‌گرهای لرزه‌ای با مقاومت صوتی و به‌دلیل میزان همبستگی حدود ۶۴٪ تخلخل با داده‌های مقاومت با استفاده از روش کریجینگ هم‌زمان مرتب از داده‌های مقاومت صوتی به‌عنوان داده ثانویه جهت توزیع بهتر تخلخل استفاده گردید (شکل ۱۰). استفاده از داده ثانویه



شکل ۱۰ نمایش مکعب لرزه‌ای مقاومت صوتی به همراه نمودار متقاطع همبستگی نگار مقاومت صوتی با تخلخل مفید (۶۴/)



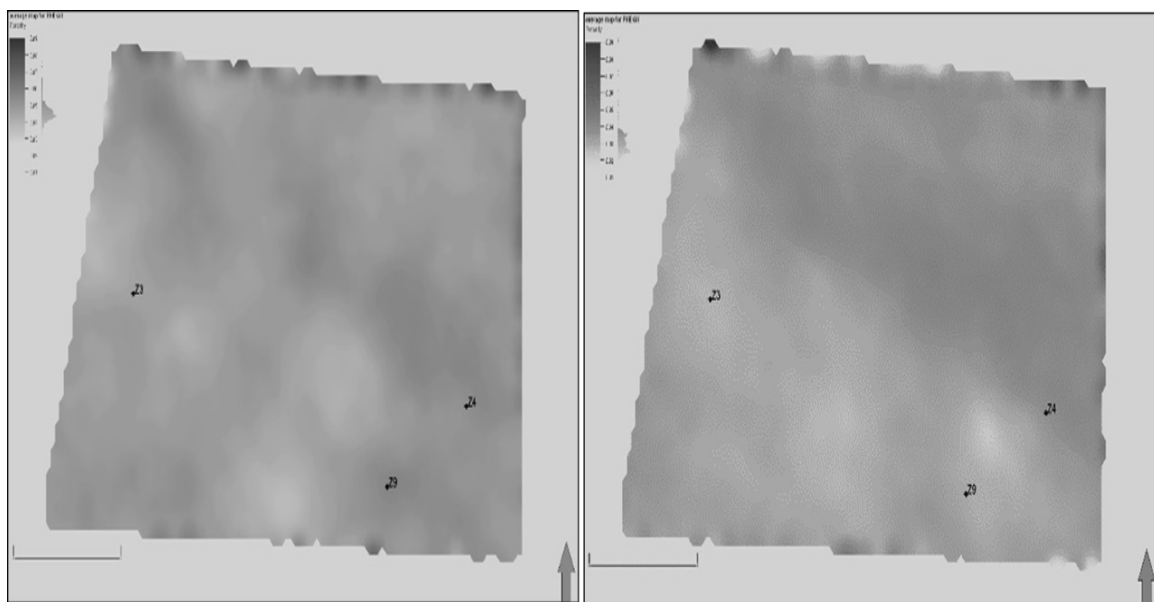
شکل ۱۱ نمایش مکعب لرزه‌ای نشان‌گرهای لرزه‌ای به همراه نمودار متقاطع همبستگی آن با تخلخل مفید (۴۵/)



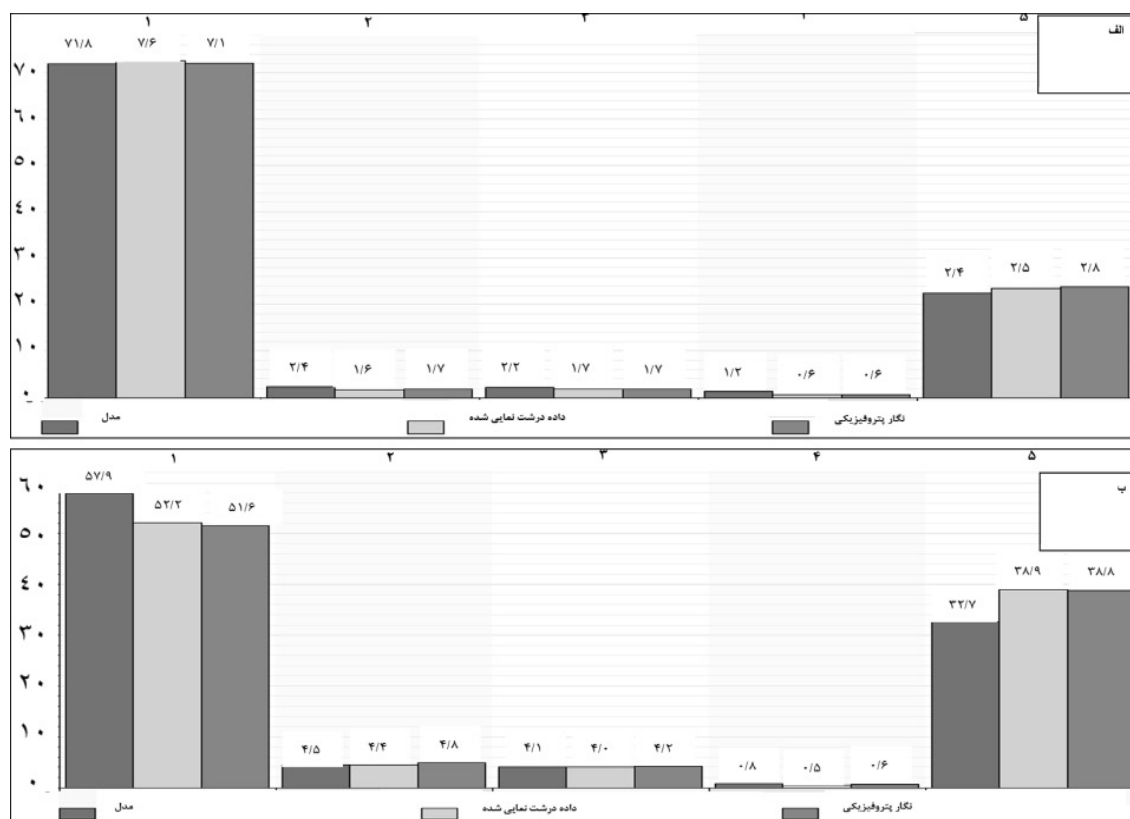
شکل ۱۲ توزیع سه‌بعدی مدل رخساره الکتریکی (الف) و تخلخل (ب)

بهتری نسبت به بخش سروک بالایی دارد. درصد رخساره‌های با کیفیت مخزنی پایین (رخساره ۱ و ۲) در سروک بالایی نسبت به سروک پایینی بیشتر بوده و نسبت رخساره‌های رخساره‌های با کیفیت مخزنی بالا (رخساره‌های ۳، ۴ و ۵) در سروک پایینی نسبت به سروک بالایی بیشتر است (شکل ۱۴). این مطالعه نشان داد از آنجا که مدل تخلخل ساخته شده متأثر از توزیع رخساره‌های الکتریکی، روند تغییرات مقاومت صوتی حاصل از تفسیر لرزه‌ای و نیز استفاده از الگوریتم زمین آماری مناسب است، دارای عدم قطعیت پایینی بوده و می‌توان از آن با اطمینان بیشتر در ادامه مدل‌سازی استاتیک و محاسبات حجم سنجی استفاده کرد.

این روش باعث افزایش دقت توزیع نسبت به‌روش‌های قطعی می‌شود [۲۵]. شایان ذکر است این روش نیاز به نرمال‌سازی استاندارد داده‌های مورد استفاده دارد [۲۶]. پس از ساخت مدل تخلخل، نقشه میانگین تغییرات تخلخل برای سروک بالایی و سروک پایینی تهیه گردید. همان‌طوری‌که در شکل ۱۳ دیده می‌شود در سروک بالایی از جنوب غرب به سمت شمال شرق میزان تخلخل زیاد می‌شود. اما در سروک پایینی روند خاصی ملاحظه نمی‌گردد؛ اگر چه در مرکز میدان و در راستای جنوب شرقی به سمت شمال غربی بر میزان تخلخل افزوده می‌شود (به دلیل عملکرد فرآیندهای دیاژنزی). به‌طور کلی، بخش سروک پایینی کیفیت مخزنی



شکل ۱۳ نقشه توزیع افقی تخلخل در سروک بالایی (الف) و سروک پایینی (ب)



شکل ۱۴ میزان توزیع خرساره ها در سروک بالایی (الف) و سروک پایینی (ب) برای داده های نگار، درشت نمایی شده و مدل شده

## نتیجه گیری

نقشه های روندی تهیه شده براساس تغییرات مقاومت صوتی جهت توزیع خرساره های الکتریکی مورد استفاده قرار گرفت.

\* در توزیع سه بعدی تخلخل تلاش گردید هر کدام از خرساره های الکتریکی از طریق آنالیز واریوگرافی به توزیع میزان تخلخل لینک گردد تا روند تغییرات خرساره ها با تخلخل هم خوانی داشته باشد. استفاده از نقشه های روندی تغییرات مقاومت صوتی منجر به توزیع صحیح خرساره های الکتریکی و آن هم به نوبه خود منجر به توزیع بهتر تخلخل می گردد.

\* به دلیل همبستگی بالای تخلخل با داده های مقاومت صوتی از این داده به عنوان داده ثانویه با استفاده از روش کریجینگ هم زمان مرتب جهت توزیع بهتر تخلخل استفاده گردید.

\* در سروک بالایی از جنوب غرب به سمت شمال شرق میزان تخلخل زیاد می شود. اما در سروک

\* براساس آنالیز خرساره های الکتریکی با استفاده از روش خوشه بندی MRGC برحسب میزان تغییرات دولومیت و تخلخل پنج خرساره تشخیص داده شد. \* خرساره های الکتریکی یک و دو با دارا بودن تخلخل ناچیز و کمتر از حد برش فاقد کیفیت مخزنی می باشند. اما خرساره های سه، چهار و پنج با میانگین تخلخل بالاتر دارای کیفیت مخزنی نسبتاً خوبی بوده و به دلیل اختلاف لیتولوژی (آهک و دولومیت) از همدیگر تفکیک گردیدند.

\* نشان گر وارون سازی لرزه ای، تضعیف موج لرزه ای، پوش لرزه ای و دامنه RMS به همراه نشان گر مقاومت صوتی پس از تهیه توسط شبکه عصبی پترل به یک نشان گر تبدیل شدند و سپس براساس آن نقشه های روندی جهت توزیع خرساره های الکتریکی و تخلخل تهیه گردید.

\* با توجه به رابطه عکس مقاومت صوتی با تخلخل،



نیز الگوریتم زمین آماری مناسب (GRFS) می توان با اطمینان بیشتر در ادامه مدل سازی استاتیک و محاسبات حجم سنجی استفاده کرد.

### تشکر و قدردانی

بدین وسیله از شرکت مهندسی و توسعه سروک آذر و زحمات آقای مهندس کرکوتی و آقای مهندس شوراب به دلیل همکاری در تهیه این مقاله تقدیر و قدردانی می شود

پایینی روند خاصی ملاحظه نمی گردد؛ اگر چه در مرکز میدان و در راستای جنوب شرقی به سمت شمال غربی بر میزان تخلخل افزوده می شود. \* کیفیت مخزنی سروک پایینی به دلیل گسترش رخساره های مخزنی خوب نسبت به سروک بالایی بیشتر می باشد.

\* از مدل تخلخل ساخته شده به دلیل استفاده همزمان و تلفیقی از نقشه های تغییرات مقاومت صوتی، مدل رخساره الکتریکی، کریجینگ همزمان مرتب جهت استفاده از داده ثانویه مقاومت صوتی و

### مراجع

- [1]. Kaufmann O, Martin T (2008) 3D Geological Modelling From Boreholes, Cross-Sections And Geological Maps, Application over Former Natural Gas Storages in Coal Mines. Computers and Geosciences 34, 3: 278-290.
- [2]. Costa J F, Zingano A C, KOPPE J C (2000) Simulation—an approach to risk analysis in coal mining, Exploration and Mining Geology, 9, 1, 43-49.
- [3]. Pyrcz M J, Deutsch C V (2014) Geostatistical reservoir modeling, Oxford university press.
- [4]. Ghoghjehbeyglou M (2021) Geostatistical modeling of porosity and evaluating the local and global distribution, Journal of Petroleum Exploration and Production Technology, 11, 12: 4227-4241.
- [5]. Evans Annan B, Aidoo A, Ejeh C, Emmanuel A, Ocran D (2019) Mapping of porosity, permeability and thickness distribution: application of geostatistical modeling for the jubilee oilfield in Ghana, Geosciences 9, 2: 27-49.
- [6]. Daly C, Quental S, Novak D, (2010) A faster, more accurate Gaussian simulation. In: proceedings of the geocanada conference, calgary, AB, Canada, 10-14.
- [7]. Grader A S, Clark A B S, Al-Dayyani T, Nur A (2009) Computations of porosity and permeability of sparc carbonate using Multi-Scale CT images, International Symposium of the Society of Core Analysts, The Netherlands 27-30 September, SCA2009-Temp Paper#03-10, 10.
- [8]. Ghoghjehbeyglou M (2021) Geostatistical modeling of porosity and evaluating the local and global distribution, Journal of Petroleum Exploration and Production Technology, 11, 12: 4227-4241.
- [9]. Evans Annan B, Aidoo A, Ejeh C, Emmanuel A, Ocran D (2019) Mapping of porosity, permeability and thickness distribution: application of geostatistical modeling for the jubilee oilfield in Ghana, Geosciences, 9, 2: 27-49.
- [10]. Skalinski M, Kenter J A M (2014) Carbonate petrophysical rock typing: integrating geological attributes and petrophysical properties while linking with dynamic behaviour, Geological Society, London, Special Publications, 406: 229-259.
- [11]. Kadkhodaie A, Kadkhodaie R (2018) Review of reservoir rock typing methods in carbonate reservoirs: relation between geological, seismic, and reservoir rock types, Iranian Journal of Oil and Gas Science and Technology, 7, 4: 13-35.
- [12]. Russell B, Hampson D P, Schuelke J S, Quirein J A (1997) Multi-attribute seismic analysis, The leading Edge, 16, 1439-1443.
- [13]. Batzle M, Hofmann R, Prasad M, Kumar G, Duranti L, Han D H (2005) Seismic attenuation: observations and mechanisms, SEG Technical Program Expanded Abstracts, 1565-1568.
- [14]. Raji W, Rietbrock A (2013) Attenuation (1/Q) estimation in reflection seismic records, Journal of Geophysics and Engineering, 10, 4: 045012.
- [15]. Koson S, Chenrai P, Choowong M (2014) Seismic attributes and their applications in seismic geomorphology, Bulletin of Earth Sciences of Thailand, 6, 1: 1-9.
- [16]. Casini G, Gillespie P A, Verges A, Romaine I, Fernandez N, Casciello E, Saura E, Mehl C, Homke S, Embry J C, Aghajari L, Hunt D W (2011) Sub-seismic fractures in foreland fold and thrust belts: insight from the Lurestan Province, Zagros Mountains, Iran, Petroleum Geoscience, 17: 263-282.
- [17]. James G A, Wynd J G (1965) Stratigraphic nomenclature of Iranian oil consortium agreement area, AAPG Bull, 49: 2182-2245.

- [۱۸]. آقائباتی ع (۱۳۸۳) زمین شناسی ایران، سازمان زمین شناسی و اکتشافات معدنی کشور، ۵۸۶.
- [۱۹]. مطیعی ه (۱۳۷۲)، زمین شناسی ایران، چینه شناسی زاگرس، سازمان زمین شناسی کشور، طرح تدوین کتاب، تهران، ۵۳۶.
- [20]. Hearst J R, Nelson P H, Paillet F L (2000) Well logging for physical properties: a handbook for geophysicists, geologists, and Engineers, New York, John Wiley and Sons, 483.
- [۲۱]. ادب نژاد پ، کدخدائی ع، نوروزی غ م رستمی ا ش (۱۳۹۷) مدل سازی سه بعدی واحدهای ژئومکانیکی با استفاده از داده های لرزه ای در یکی از میادین گازی جنوب ایران. پژوهش نفت، ۲۸، (۹۷-۱)، ۸۵-۹۶.
- [۲۲]. مهدی پور و، هاشمیان خ (۱۳۹۳) مقایسه مراحل انجام مدل سازی استاتیک مخازن هیدروکربنی با استفاده از نرم افزارهای RMS و PETREL، سومین کنفرانس مهندسی مخزن، تهران، ایران.
- [23]. Kadkhodaie-Ilkhchi R, Kadkhodaie A, Rezaee M R, Mehdipour V (2019) Unraveling the reservoir heterogeneity of the tight gas sandstones using the porosity conditioned facies modeling in the Whicher Range field, Perth Basin, Western Australia, Journal of Petroleum Science and Engineering, 176: 97-115.
- [24]. Iske A, Randen T (2005) Mathematical methods and modelling in hydrocarbon exploration and production, Springer Berlin Heidelberg New York.
- [25]. Zhao S, Zhou Y, Wang M, Xin X, Chen F (2014) Thickness, porosity, and permeability prediction: comparative studies and application of the geostatistical modeling in an oil field, Environmental Research Systems, 3: 7.
- [26]. Oliver M A (2010) Geostatistical applications for precision agriculture, Springer Science and Business Media.

# بهینه‌سازی جداسازی آسفالتین از باقیمانده برج تقطیر در خلأ با استفاده از استخراج مایع-مایع به روش سطح-پاسخ

رضا عسگری<sup>۱</sup>، وهب قلعه خندابی<sup>۲</sup>، علیرضا فضلعلی<sup>۳\*</sup> و محمودرضا نیک خلق<sup>۲</sup> و عبدالرضا مقدسی<sup>۲</sup>

۱- مهندسی فرایند، شرکت پالایش نفت شازند، اراک، ایران

۲- گروه مهندسی شیمی، دانشکده فنی و مهندسی، دانشگاه اراک، ایران

۳- گروه مهندسی شیمی، شرکت اکسیرپویان، اراک، ایران

تاریخ دریافت: ۱۴۰۰/۱۱/۱۹ تاریخ پذیرش: ۱۴۰۱/۰۳/۲۲

## چکیده

در این پژوهش، بهینه‌سازی فرآیند جداسازی آسفالتین از باقی‌مانده برج تقطیر خلأ با استفاده از حلال‌های صنعتی نرمال پنتان، هگزان و هپتان انجام شده است. از طراحی مرکب مرکزی به عنوان یکی از روش‌های طراحی آزمایش سطح-پاسخ، برای بهینه‌سازی فرآیند استفاده شده است. درصد وزنی آسفالتین باقیمانده و درصد بازدهی نفت آسفالتین‌زدایی شده تحت شرایط بهینه اقتصادی (حلال نرمال هگزان، نسبت حلال به خوراک برابر با ۵/۹ mL/g و دمای استخراج ۲۵ °C) به ترتیب ۰/۴۴۷ و ۴۸٪ حاصل شدند. تحلیل نتایج نشان داد که مدل درجه دوم پاسخ برای پارامترهای مورد مطالعه قابل قبول است و مطابقت زیادی بین مدل ریاضی و داده‌های آزمایشگاهی وجود دارد. به‌علاوه، طبق آنالیز واریانس، دمای استخراج و برهم‌کنش درجه دوم پارامتر نسبت حلال به خوراک، تأثیر چشمگیری بر درصد وزنی آسفالتین دارند. علاوه بر این، نتایج نشان داد که رویکرد معرفی‌شده یک روش کارآمد و اقتصادی برای افزایش ظرفیت واحد شکست کاتالیستی باقیمانده‌ها و تولید قیر مرغوب می‌باشد.

**کلمات کلیدی:** آسفالتین‌زدایی توسط حلال، باقیمانده برج تقطیر خلأ، بهینه‌سازی، حلال‌های صنعتی، قیر.

## مقدمه

توسعه داده است. از فرآیندهای رایج بهبود کیفیت، فرآیندهای کاتالیستی هستند، اما به دلیل وجود آسفالتین، فلزات سنگین، گوگرد و نیتروژن، لازم است که میزان این ترکیبات به حد قابل قبولی کاهش یابد. رسوب آسفالتین باعث ایجاد کک در مبدل‌های حرارتی، ستون‌های تقطیر، گرفتگی فیلترها و همچنین باعث غیرفعال شدن سطح کاتالیست می‌شود. به‌منظور جلوگیری از رسوب

قوانین زیست محیطی و بحران انرژی، کشورهای تولیدکننده فرآورده‌های نفتی را به بهبود کیفیت باقیمانده‌های سنگین پالایشگاهی ملزم ساخته است. ایران نیز با توجه به حجم زیاد باقیمانده‌های سنگین، واحدهای بهبود کیفیت این فرآورده‌ها را

\*مسئول مکاتبات

a-fazlali@araku.ac.ir

آدرس الکترونیکی

شناسه دیجیتال: (DOI:10.22078/PR.2022.4733.3125)

و میکروسکوپی، ساختار آسفالتین را به شکل فرمول فرضی  $C_{74}H_{87}NS_2O$  پیشنهاد کرد [۷]. بررسی‌ها توسط طیف‌سنجی جرمی تفکیک بالا چیزی نزدیک به ۷۲۰۰ مولکول مختلف را در ترکیب آسفالتین نشان داده‌اند [۸].

فرآیند استخراج آسفالتین با حلال به عنوان یک فناوری توسعه ای در زمینه حذف یا به حداقل رساندن تولید نفت کوره با آلودگی کاهش یافته محسوب می‌گردد. همچنین، استفاده از این فناوری به واسطه حذف محصولات سنگین باقیمانده تقطیری از جمله، باقیمانده برج تقطیر خلأ طی فرآیند اختلاط، ضمن به حداقل رساندن برش‌های میان تقطیری افزودنی<sup>۳</sup> از جمله نفت سفید، منتج به تولید نفت کوره با کیفیت بالا می‌شود [۹-۱۱]. محصولات پایینی برج تقطیر در خلأ شامل محصولات با ارزشی هستند. با انجام عملیاتی بر روی این برش از برج تقطیر، جریانی از محصولات اولیه شامل آسفالت (آسفالتین، رزین‌های نرم و سخت) و نفت آسفالتین‌زدایی شده<sup>۴</sup> (DAO)، را شامل می‌شود [۱۲]. در روش آسفالتین زدایی با حلال، حلال‌های هیدروکربنی سبک، در صورت نیاز در ابتدا مترکم شده و سپس در تماس با خوراک باقیمانده (حاوی آسفالتین) قرار می‌گیرد. فاز سبک شامل نفت آسفالتین زدایی شده و فاز سنگین‌تر که از پایین ستون قابل حصول است، شامل ترکیبات آسفالتی می‌باشد. در مرحله نهایی باید حلال مورد استفاده بازیابی گردد، از این‌رو هریک از جریان‌ها به‌طور جداگانه به ستون بازیابی حلال فرستاده می‌شوند [۱۲].

هدف از پژوهش حاضر، افزایش ظرفیت خوراک واحد شکست کاتالیستی بسترسیال باقیمانده‌ها<sup>۵</sup> (RFCC) شرکت پالایش نفت شازند بوده و چنانچه بتوان خوراکی با مشخصات طراحی واحد RFCC از سایر بخش‌های پالایشگاه تولید کرد، می‌توان از میزان

آسفالتین در تجهیزات فرآیندی، لازم است قبل از ورود ته مانده برج تقطیر در خلأ (VB) به واحدهای پالایشگاهی، آسفالتین موجود در آن را با روش‌های مختلف، تا حد مطلوب کاهش داد، که یکی از این روش‌ها فرآیند آسفالتین زدایی با حلال‌های پارافینی<sup>۱</sup> (SDA) می‌باشد. محصول این فرآیند، خوراک واحدهای روغن‌سازی و شکست کاتالیستی با حضور هیدروژن یا بدون آن است [۱].

بر اساس آنالیز سارا، ترکیبات شیمیایی در نفت خام به چهار گروه اصلی تقسیم می‌شوند که عبارتند از: ترکیبات اشباع (S)، ترکیبات آروماتیکی (A)، رزین‌ها (R) و آسفالتین (A) [۲]. کلمه آسفالتین اولین بار توسط بوسینگالت بکار گرفته شد. بوسینگالت در بررسی آسفالت شرق فرانسه و پرو به اجزایی برخورد کرد، که در الکل نامحلول و در ترپنتین<sup>۲</sup> محلول بودند و شباهت زیادی نیز به آسفالت داشتند، که آسفالتین نامیده شدند [۳]. آسفالتین یک سیال نفتی را، مطابق گفته نلستین می‌توان به‌عنوان بخش غیرقابل حل در هیدروکربن‌های پارافینی دارای نقطه جوش پایین، اما قابل حل در تتراکلرید کربن و بنزن تعریف نمود. بعدها فایفر، آسفالتین را به‌عنوان بخش نامحلول در حلال‌های پارافینی سبک مثل نرمال هپتان اما محلول در حلال‌های آروماتیکی مثل تولوئن تعریف نمود [۴]. آسفالتین‌ها جامدهایی شکننده با رنگ قهوه‌ای تیره متمایل به سیاه هستند که نقطه ذوب معینی ندارند. خواص (وزن مولکولی، قطبیت و آروماتیسیته) آسفالتین رسوب شده، به طول زنجیر نرمال آلکان رسوب‌دهنده بستگی دارد [۵]. پیچیدگی‌های این جزء نفتی باعث شده تا ویژگی‌های آسفالتین از نفت‌های خام مختلف متفاوت باشد. میزان آسفالتین موجود در مخازن نفتی از ۰/۱ تا ۱۷ درصد وزنی با چگالی در حدود  $1000-1200 \text{ kg/m}^3$  گزارش شده است [۶]. وزن مولکولی متعارف مونومرهای آسفالتین عموماً در محدوده بین  $500-2000 \text{ g/mol}$  است و اندازه مونومرهای آسفالتین در محدوده  $24 \text{ \AA}$  قرار دارد [۲]. ین با استفاده از آنالیز میکروسکوپی

1. Solvent Deasphalting

2. Turpentine

3. Cutter

4. Deasphalted Oil

5. Residual Fluid Catalytic Cracking

استاندارد خوراک واحد RFCC و استاندارد قیر ۶۰-۷۰ به ترتیب مقایسه شد.

### مواد و روش‌ها

#### مواد

ماده اولیه برای انجام آزمایش‌ها، باقیمانده سنگین حاصل از تقطیر در خلأ منطقه الف فاز یک پالایشگاه شازند است که مشخصات آن در **جدول ۱** ارائه شده است. همچنین مشخصات حلال‌های مورد استفاده در **جدول ۲** بیان گردیده است.

#### طراحی آزمایش

طراحی آزمایش (DoE) به سلسله آزمون‌هایی اطلاق می‌شود که عوامل مؤثر بر یک فرآیند و میزان تأثیر آن‌ها را مشخص می‌کند [۱۳]. انواع طرح آزمایش را می‌توان به دو روش فاکتوریل کامل<sup>۱</sup> و فاکتوریل جزئی<sup>۲</sup> تقسیم کرد. روش تاگوچی و سطح پاسخ (RSM) جزء روش‌های فاکتوریل جزئی هستند. روش سطح پاسخ (ترکیبی از تکنیک‌های ریاضی و آماری) دارای چهار مرحله: طراحی آزمایش‌ها، پردازش مدل، بررسی صحت مدل و بهینه‌سازی می‌باشد [۱۴].

**جدول ۱** مشخصات ته‌مانده برج تقطیر در خلأ پالایشگاه شازند

مشخصات	مقدار	روش استاندارد
چگالی (Sp.Gr) در $15/56^{\circ}\text{C}$ ( $\text{g/cm}^3$ )	۱	ASTM D 4052 [۲۹]
گرانروی در $100^{\circ}\text{C}$ (cSt)	۳۶۰	ASTM D 445 [۳۰]
آسفالتین (%wt)	۶	UOP 614 [۳۱]
کربن باقیمانده <sup>۳</sup> (CCR) (%wt)	۲۰	ASTM D 189 [۳۲]
کل گوگرد (T.S) (%wt)	۴	ASTM D 4294 [۳۳]
نیکل (ppm)	۳۵	UOP 800 [۳۴]
وانادیوم (ppm)	۱۱۰	UOP 800 [۳۴]

**جدول ۲** مشخصات حلال‌های صنعتی مصرفی

نوع حلال	فرمول مولکولی	جرم مولی ( $\text{g/mol}$ )	چگالی ( $\text{g/cm}^3$ )	نقطه جوش ( $^{\circ}\text{C}$ )	پالایشگاه تولیدکننده
پنتان	$\text{C}_5\text{H}_{12}$	۷۲/۱۵	۰/۶۲۶۰	۳۶/۱۰	کرمانشاه
هگزان	$\text{C}_6\text{H}_{14}$	۸۶/۱۸	۰/۶۵۵۰	۶۸/۷۳	شازند
هپتان	$\text{C}_7\text{H}_{16}$	۱۰۰/۲۱	۰/۶۷۹۵	۹۸/۴۲	تهران

1. General Factorial Design
2. Fractional Factorial Design
3. Conradson Carbon Residue



(پاسخ) در نظر گرفته شد و عملکرد فرآیند استخراج به وسیله آنالیز آن ارزیابی شد. در این بین فشار استخراج (فشار اتمسفری) و سرعت هم زدن محلول، به جهت عدم امکان تغییر فشار در شرایط آزمایشگاهی و دیگری به دلیل تأثیرگذاری کمتر ثابت نگه داشته شدند. سه متغیر وابسته به پارامترهای بی بعد تبدیل شدند. سطوح پایین، مرکز و بالای هریک از متغیرها بر اساس طراحی مرکب مرکزی از روش های طراحی سطح-پاسخ، به ترتیب مقادیر ۱-، ۰ و ۱+ تعریف شدند. برای محاسبات آماری، متغیرهای مستقل انتخاب شده به کدهای بی بعد تبدیل شدند، که این حالت امکان مقایسه پارامترهای مختلف با ابعاد متفاوت را به ما می دهد و سبب کاهش خطا در مدل چندجمله ای می شود. **جدول ۳** متغیرهای وابسته و کدهای استفاده شده آن ها در طراحی مرکب مرکزی را نشان می دهد. تعداد آزمایش ها (N) برای طراحی مرکب مرکزی از رابطه  $N=2^k+2k+C_0$  محاسبه می شود که در آن k تعداد فاکتورها و  $C_0$  تعداد نقاط مرکزی است که معمولاً ۳ در نظر گرفته می شود [۱۹]. بر اساس آنالیز آماری توسط نرم افزار، آزمایش ها بایستی در ۸ نقطه فاکتوریل  $(2^k)$ ، ۶ نقطه محوری  $(2k)$  و ۳ نقطه مرکزی (C) و در مجموع ۱۷ نقطه انجام گیرد (**جدول ۴**).

#### شرح آزمایش

مقدار ۲۰ g از نمونه (باقیمانده برج تقطیر در خلأ) را با نسبت های مختلف (۵-۱۵ mL/g) از حلال ( $C_5-C_7$ ) به یک بشر با حجم ۵۰۰ mL اضافه می کنیم و سپس به مدت یک ساعت نمونه ها را به منظور یکنواخت شدن بر روی همزن مغناطیسی در فشار اتمسفر و دماهای متفاوت (۳۵-۱۵ °C) قرار می دهیم.

مدل درجه ۲ برای فرآیندهای صنعتی مناسب است و دارای نقاط قوتی همچون انعطاف پذیری بسیار بالا، عملکرد مناسب در تقریب صحیح از پاسخ و سهولت در تخمین زدن عامل های  $\beta$  می باشد [۱۵]. با توجه به مزیت های مدل درجه ۲ و همچنین عملیاتی بودن اطلاعات، از این نوع مدل برای بررسی تأثیر متغیرهای ورودی بر متغیرهای خروجی در فرآیند استخراج استفاده شد. در واقع از آنجایی که شرایط عملیاتی ممکن است با تغییرات غیراصولی همراه باشد مدل درجه ۲ غیرخطی قابلیت توصیف آن را دارد. مدل چندجمله ای درجه ۲ را می توان به شکل رابطه زیر در نظر گرفت [۱۶]:

$$Y = \beta_0 + \sum_{i=1}^n \beta_i x_i + \sum_{i=1}^n \beta_{ii} x_i^2 + \sum_{i < j} \beta_{ij} x_i x_j + \epsilon \quad (1)$$

در این معادله Y پاسخ،  $x_i$  و  $x_j$  متغیرهای مستقل،  $\beta_0$  عدد ثابت و  $\beta_i$ ،  $\beta_{ii}$  و  $\beta_{ij}$  به ترتیب ضرایب جملات خطی، درجه ۲ و برهم کنش دوتایی هستند.  $\epsilon$  هم به عنوان خطا در نظر گرفته می شود. سه طرح کاربردی مرکب مرکزی (CCD)، باکس بنکن (BBD) و دهلرت در برآزش مدل مرتبه دوم در روش سطح پاسخ به کار می رود. هر سه روش فوق بر پایه ترکیبی از طرح های فاکتوریل کامل و فاکتوریل جزئی ساخته شده اند [۱۷].

در این مطالعه برای طراحی، مدل سازی ریاضی و بهینه سازی از نرم افزار طراحی آزمایش Design-Expert software (version 13.0.1.0, Stat-Ease Inc., USA) بهره گرفتیم [۱۸]. متغیرهای مستقل عبارتند از: نوع حلال ( $X_1$ )، نسبت حلال به خوراک ( $X_2$ ) و دمای استخراج ( $X_3$ ). درصد وزنی آسفالتین در نمونه آسفالتین زدایی شده (Y) به عنوان پارامتر وابسته

**جدول ۳** متغیرهای مستقل و مقادیر کد آن ها در طراحی مرکب مرکزی

نماد	پارامتر	واحد	مقادیر کد شده		
			-۱	۰	+۱
$X_1$	نوع حلال	-	$C_5$	$C_6$	$C_7$
$X_2$	نسبت حلال به خوراک	mL/g	۵	۱۰	۱۵
$X_3$	دمای استخراج	°C	۱۵	۲۵	۳۵

جدول ۴ طراحی ماتریکس آزمایشگاهی جهت بهینه‌سازی

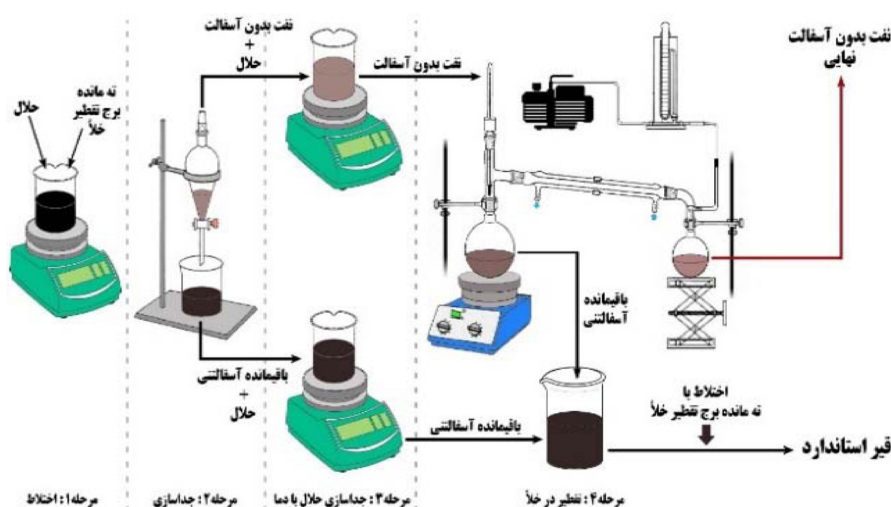
استاندارد	آزمایش	نوع	پارامترهای مستقل			پاسخ
			نوع حلال	نسبت حلال به خوراک	دمای استخراج	درصد وزنی آسفالتین باقیمانده
۱	۷	فاکتوریل	C <sub>5</sub>	۵	۱۵	۱/۱۰
۲	۲		C <sub>7</sub>	۵	۱۵	۱/۷۹
۳	۹		C <sub>5</sub>	۱۵	۱۵	۱/۲۲
۴	۱۷		C <sub>7</sub>	۱۵	۱۵	۱/۹۶
۵	۱۲		C <sub>5</sub>	۵	۳۵	۰/۷۶
۶	۸		C <sub>7</sub>	۵	۳۵	۱/۱۵
۷	۱۳		C <sub>5</sub>	۱۵	۳۵	۰/۱۶
۸	۱۵		C <sub>7</sub>	۱۵	۳۵	۰/۴۰
۹	۱۴	محوری	C <sub>5</sub>	۱۰	۲۵	۰/۲۱
۱۰	۶		C <sub>7</sub>	۱۰	۲۵	۰/۵۲
۱۱	۱		C <sub>6</sub>	۵	۲۵	۱/۳۱
۱۲	۳		C <sub>6</sub>	۱۵	۲۵	۰/۵۳
۱۳	۵		C <sub>6</sub>	۱۰	۱۵	۰/۹۵
۱۴	۴		C <sub>6</sub>	۱۰	۳۵	۰/۲۹
۱۵	۱۰	مرکزی	C <sub>6</sub>	۱۰	۲۵	۰/۳۹
۱۶	۱۶		C <sub>6</sub>	۱۰	۲۵	۰/۳۹
۱۷	۱۱		C <sub>6</sub>	۱۰	۲۵	۰/۳۹

سپس محلول را درون قیف جداکننده ریخته که بعد از گذشت یک ساعت دو فاز حلال-روغن (DAO) و حلال-آسفالتین (Pitch) به وجود می‌آیند که براساس اختلاف چگالی از هم جدا می‌شوند. سپس جداسازی حلال از هر دو فاز با افزایش دما انجام می‌گیرد. در مرحله بعد بر روی نفت آسفالتین زدایی شده جداسازی با تقطیر در خلأ انجام داده تا به نفت آسفالتین زدایی شده نهایی دست یابیم. در آخر به ترکیب باقیمانده آسفالتنی به دست آمده از قیف جداکننده و تقطیر در خلأ، ته مانده برج تقطیر اضافه کرده تا قیر استاندارد حاصل شود. در شکل ۱ نمایی از آزمایش نمایش داده شده است.

**آنالیز نمونه‌ها**

برای اندازه‌گیری مقدار آسفالتین موجود در نمونه از روش استاندارد UOP ۶۱۴ استفاده شد [۲۰]. مقدار ۱ g از نمونه خوراک را وزن کرده و در داخل ارلن

مایر ریخته و به آن ۲۵۰ mL حلال اضافه می‌کنیم و آن را به مدت ۵۰-۳۰ s با همزن مکانیکی هم زده تا مخلوط کاملاً یکنواخت گردد. سپس محتویات ارلن را روی حمام آب گرم که دمای آن در ۸۰ °C تنظیم شده قرار می‌دهیم و با یک شیب ملایمی دمای محتویات ظرف را تا نزدیک نقطه جوش حلال افزایش می‌دهیم، به‌طوری که به مدت ۳ h در این دما ثابت نگه داشته شود. بعد از گذشت مدت زمانی کوتاه، رسوبات تشکیل شده آسفالتن مشاهده می‌گردد. سپس محلول به دست آمده از فیلتری با قطر ۳۵ mm (با قطر روزه‌های ۵ μm) عبور داده می‌شود. رسوب تشکیل شده روی کاغذ صافی را با حلال تمیز شستشو داده تا در صورت باقی ماندن هیدروکربن‌های اشباع سنگین در خلل و فرج رسوب، شسته شده و از کاغذ صافی عبور کنند. در نهایت رسوب را در جای تمیز و خشک قرار داده تا رطوبت آن از بین برود.



شکل ۱ دیاگرام شماتیک تجهیزات آزمایشگاهی استخراج آسفالتین

### نتایج و بحث آنالیز طراحی آزمایش

در ابتدا به تحلیل داده‌های مدلسازی می‌پردازیم. یک مدل چندجمله‌ای درجه دوم بر اساس روش حداقل مربعات<sup>۲</sup> به‌منظور پیش‌بینی پاسخ سیستم و تخمین ضرایب، از طریق همبستگی برهم‌کنش‌ها میان متغیرهای فرآیندی و پاسخ، مورد استفاده قرار گرفت. معادله (۳) (خروجی نرم‌افزار طراحی آزمایش)، مدل طراحی مرکب مرکزی برای درصد وزنی آسفالتین محصول نفت آسفالتین زدایی شده مرحله استخراج را ارائه می‌دهد:

$$Y = +0.3712 + 0.0318X_1 - 0.2183X_2 - 0.4100X_3 - 0.1717X_1X_2 + 0.0800X_1X_3 - 0.2050X_2X_3 + 0.5073X_2^2 + 0.2073X_3^2 \quad (3)$$

در این معادله  $X_1$ ،  $X_2$ ،  $X_3$  و  $Y$  به ترتیب نوع حلال، نسبت حلال به خوراک، دمای استخراج و درصد وزنی آسفالتین هستند. ضرایب معادله (۳) نشان می‌دهند که متغیر مستقل دمای استخراج و برهم‌کنش مرتبه ۲ نسبت حلال به خوراک تأثیر بیشتری بر روی درصد وزنی آسفالتین دارند. نتایج تحلیل واریانس مدل درجه دوم درصد وزنی آسفالتین در جدول ۵ ارائه گردیده است.

وزن آسفالتین با کم کردن وزن ظرف و فیلتر از مجموع وزن ظرف، فیلتر و آسفالتین ته‌نشین شده به دست می‌آید. درصد وزنی آسفالتین توسط رابطه زیر محاسبه شده است:

$$wt.\% = \frac{w_g - w_t}{w_s} \times 100 \quad (2)$$

که در آن  $w_g$ ،  $w_t$  و  $w_s$  به ترتیب وزن ظرف+نمونه+فیلتر، وزن ظرف+فیلتر و وزن نمونه می‌باشند.

برای تعیین میزان باقیمانده کربنی کنرادسون، ترکیبات گوگردی و فلزات نیکل و وانادیوم به ترتیب از دستگاه‌های (NORMALAB, model NMC 210)، (X-Ray Fluorescence Sulfur method ASTM D 189)، (X-Ray Fluorescence Sulfur Analyzer, model 87-1152, method ASTM D 4294) (XRF Spectroscopy, model PANalytical-Epsilon 3, method UOP 800) استفاده شده است.

برای اندازه‌گیری چگالی، درجه نفوذ، نقطه نرم‌شدن، کشش‌پذیری، اتلاف به دلیل حرارت کاهش نفوذ پس از حرارت‌دهی، نقطه اشتعال، حلالیت در کربن دی‌سولفید و تست لکه<sup>۱</sup> به ترتیب از روش‌های [۲۱] ASTM D 71، [۲۲] ASTM D 5، [۲۳] ASTM D 36، [۲۴] ASTM D 113، [۲۵] ASTM D 6، [۲۶] ASTM D 4، ASTM D 92، ASTM D 6 و 102 A.A.S.H.O.T<sup>۳</sup> استفاده شد.

1. Spot Test

2. American Association of State Highway Officials

3. Least-Squares Method

جدول ۵ آنالیز واریانس برای پاسخ سطح‌ترم های مدل چند جمله‌ای مرتبه ۲

منبع	مقدار F	مقدار P
مدل	۹۵/۳۴	<۰/۰۰۰۱
خطی	$X_1$	۶۱/۹۱
	$X_2$	۷۳/۸۳
	$X_3$	۳۹۵/۷۶
برهم کنش	$X_1X_2$	۱۱/۷۰
	$X_1X_3$	۱۱/۲۴
	$X_2X_3$	۷۳/۳۲
درجه ۲	$X_2^2$	۱۵۰/۳۸
	$X_3^2$	۲۵/۱۱
باقیمانده <sup>۱</sup>	۰/۰۰۴۶	عدم برازش <sup>۲</sup>
خطای خالص <sup>۳</sup>	۰/۰۰۰۰	کل اصلحیه <sup>۴</sup>
انحراف معیار	۰/۰۶۷۷	$R^2$
میانگین	۰/۷۹۵۳	$R^2$ تطبیقی <sup>۵</sup>
ضریب واریانس	۸/۵۱	$R^2$ پیش بینی شده <sup>۶</sup>
باقیمانده مجموع مربعات <sup>۷</sup>	۰/۴۶۰۵	دقت کافی

و  $R^2_{adj}$  برای مدل به ترتیب ۰/۹۸۴۸ و ۰/۹۹۵۳ به دست آمد و همچنین مقدار  $R^2_{pred}$  (۰/۹۰۴۷) به  $R^2_{adj}$  نزدیک است. بنابراین، مقدار  $R^2$  برای معادله (۳) به ۱ نزدیک بوده که نشان‌دهنده تطابق نتایج مدل با مقادیر تجربی می‌باشد [۲۸]. دقت کافی<sup>۷</sup> (AP) نسبت سیگنال به نویز را اندازه‌گیری می‌کند که نسبت ۳۱/۶۱۴۵ (بزرگ‌تر از ۴) نشانگر یک سیگنال مناسب است. بنابراین، این مدل می‌تواند به‌عنوان هدایت‌گر فضای طراحی مورد استفاده قرار گیرد. انحراف معیار<sup>۸</sup> (Std. Dev) اختلاف میان داده‌های پیش‌بینی‌شده و تجربی را نشان می‌دهد. مقدار پائین آن (۰/۰۶۷۷) به‌طور معمول برای یک مدل مناسب می‌باشد. ضریب واریانس<sup>۹</sup> (%C.V) به‌عنوان

مقادیر F و P به ترتیب ۹۵/۳۴ و <۰/۰۰۰۱ گزارش گردید که نشان‌دهنده معنادار بودن مدل تطبیقی می‌باشد. مقدار بالای F نشانگر آن است که بیشترین تغییرات پاسخ را می‌توان با مدل رگرسیون شرح داد [۲۷]. در این مدل جمله‌هایی که مقدار P آن‌ها کوچک‌تر از ۰/۰۵ است، در مدل رگرسیون اهمیت بیشتری دارند و در مقابل جملاتی که مقدار P آن‌ها بیشتر از ۰/۱۰۰۰ باشد، پارامترهای بی‌اهمیتی در مدل هستند [۱۵]. با توجه به جدول ۵ تمامی جمله‌های خطی، درجه دوم و برهم‌کنش دارای چنین شرایطی هستند. از طرفی دمای استخراج و برهم‌کنش درجه دوم نسبت حلال به خوراک دارای  $P < ۰/۰۰۰۱$  هستند که گویای آن است که این پارامترها برای مدل درصد وزنی آسفالتین دارای اهمیت بیشتری هستند.

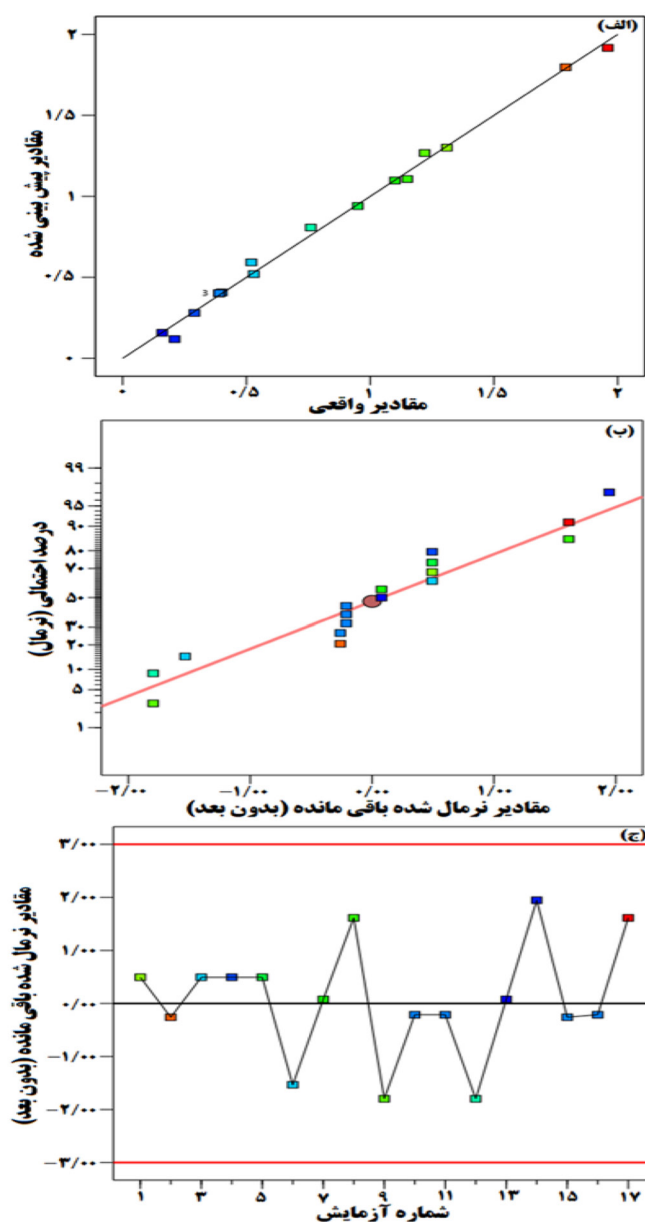
کیفیت برازش مدل توسط ضرایب همگرایی  $R^2$  و  $R^2_{adj}$  تعیین می‌گردد که به ترتیب نشان‌دهنده میزان نوسان در مقدار پاسخ و کسری از نوسانات پاسخ است که توسط مدل تفسیر می‌شوند.  $R^2$

1. Residual
2. Lack of Fit
3. Pure Error
4. Cor Total
4. Adjusted
5. Predicted
6. Predicted Residual Sum of Squares
7. Adequate Precision
8. Standard Deviation
9. Coefficient of Variance

نسبت خطای استاندارد داده‌های تخمینی به میانگین مقدار پاسخ مشاهده شده تعریف می‌شود که معیاری از تکرارپذیری مدل است. مقدار آن برای یک مدل مناسب بایستی کمتر از ۱۰ (۸/۵۱) باشد [۲۹].

منحنی مقادیر احتمال نرمال باقیمانده و داده‌های پیش‌بینی‌شده در شکل ۲ نشان داده شده است. شکل ۲ نشان می‌دهد که تطابق خوبی میان داده‌های واقعی و مدل وجود دارد (شکل ۲ الف)). بنابر شکل

۲ (ب) داده‌های مشاهده شده دارای توزیع نرمال هستند و الگوی خط راست  $y=x$  وجود دارد. بنابراین، مدل چندجمله‌ای درجه دوم برای پیش‌بینی مقادیر درصد وزنی آسفالتین محصول نفت آسفالتین زدایی شده استخراج مناسب می‌باشد [۳۰]. همچنین از شکل ۲ (ج) مشاهده می‌شود که مقادیر خطا برای همه آزمایش‌ها به صورت تصادفی بوده است یا به عبارت دیگر، تولید خطای یکسان در آزمایش‌ها مشاهده نمی‌شود [۳۱].



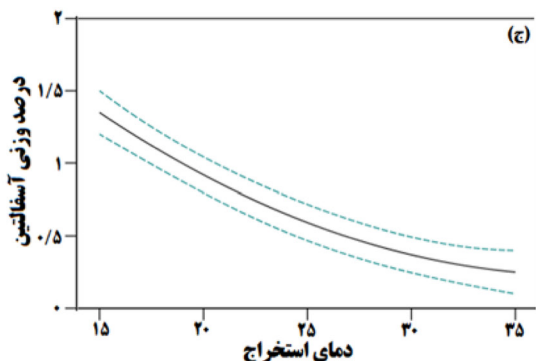
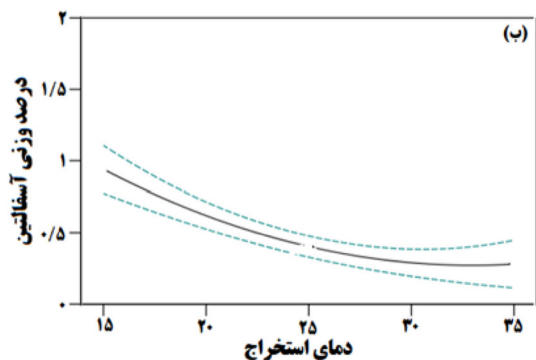
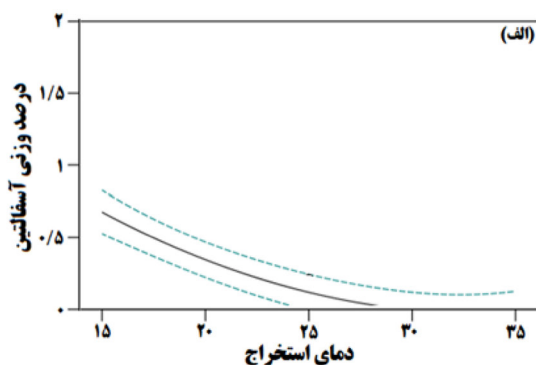
شکل ۲ (الف) مقادیر واقعی در برابر مقادیر پیش بینی شده، (ب) نمودار احتمال نرمال و (ج) نمودار مقادیر خطا در هر آزمایش



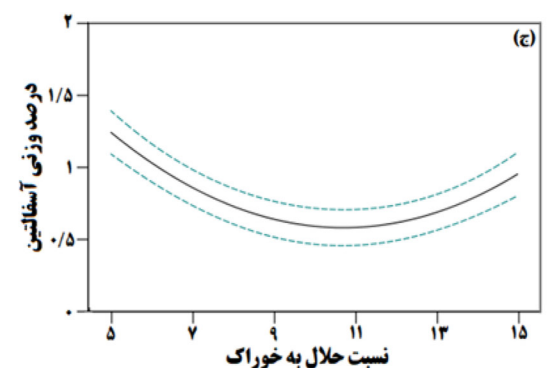
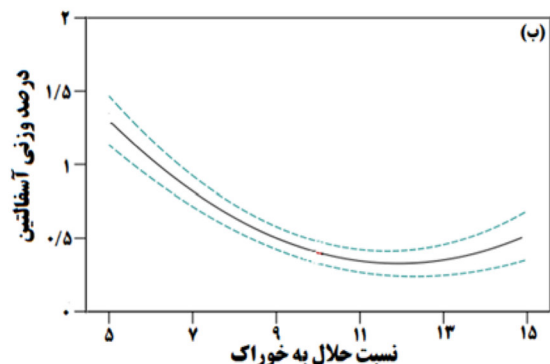
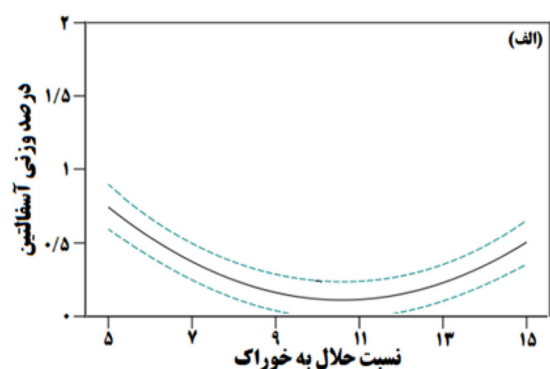
### تأثیر پارامترهای عملیاتی بر روی عملکرد فرآیند استخراج

زمانی که باقیمانده‌های سنگین، تحت فرآیند استخراج با حلال قرار می‌گیرد، برخی خواص آن در جهت مطلوب کاهش و برخی دیگر افزایش می‌یابد که میزان کاهش یا افزایش بستگی به شرایط استخراج خواهد داشت. از منحنی‌های دو بعدی (تک فاکتور) برای توصیف گرافیکی تأثیر متغیرهای

مستقل آزمایشگاهی بر روی درصد وزنی آسفالتین محصول استخراج شده استفاده گردید. منحنی‌های سطح پاسخ از معادله (۳) به دست آمدند که در شکل‌های ۳، ۴ و ۵ به تصویر کشیده شده‌اند. این شکل‌ها تأثیر متغیرهای فرآیندی همچون نوع حلال، نسبت حلال به خوراک و دمای استخراج بر روی درصد وزنی آسفالتین محصول استخراج را نشان می‌دهند.



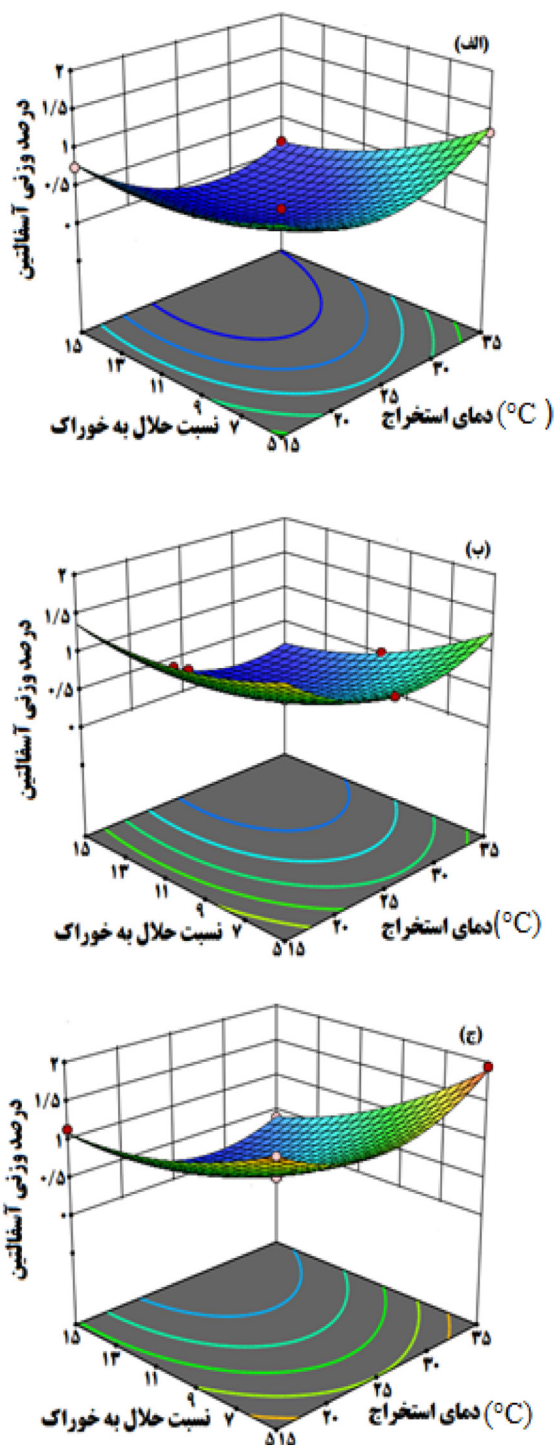
شکل ۴ تأثیر دما بر روی درصد وزنی آسفالتین باقیمانده برای حلال (الف) پنتان، (ب) هگزان و (ج) هپتان



شکل ۳ تأثیر نسبت حلال به خوراک بر روی درصد وزنی آسفالتین (الف) پنتان، (ب) هگزان و (ج) هپتان

یابد، این متغیر اصلی طراحی است که کیفیت روغن استخراج شده را بهبود می بخشد. در دمای ثابت با افزایش نسبت حلال به خوراک، میزان روغن استخراج شده، گرانی و روغن، میزان کربن باقیمانده، فلزات، گوگرد و نیتروژن روغن استحصالی افزایش می یابد و در عوض شاخص گرانی و دانسیته API کاهش می یابد [۳۲]. در رسوب آسفالتین، افزایش نسبت حلال به خوراک موجب انحلال رزین های بیشتر و همچنین افزایش درصد رسوب آسفالتین می گردد. افزایش نسبت حلال به خوراک، باعث برهم خوردن تعادل میان ترکیبات خوراک و انحلال بیشتر رزین ها در حلال می شود. زیرا با افزایش نسبت حلال، نیروی جاذبه میان حلال و رزین به حدی قوی می گردد که تعادل جزئی میان آسفالتین و رزین برهم خورده و ذرات آسفالتین آزاد می گردد. همین اتفاق را می توان با پارامتر حلالیت نیز توجیه کرد زیرا پارامتر حلالیت رزین به حلال نزدیک تر بوده و با افزایش میزان حلال، رزین های بیشتری از آسفالتین جدا می شود و در کل موجب افزایش درصد رسوب آسفالتین می گردد [۳۳].

با افزایش نسبت حلال، درصد وزنی آسفالتین تا یک مقدار، مطابق با مرحله ته نشینی کاهش می یابد، سپس افزایش می یابد (شکل ۳). شکل ۳ نشان می دهد که افزایش نسبت حلال به خوراک تا نقطه بهینه تأثیر مثبتی بر روی فرآیند می گذارد به طوری که با افزایش این نسبت از ۵ mL/g تا ۱۰ mL/g درصد وزنی آسفالتین در مورد حلال های پنتان، هگزان و هپتان در دمای ۲۵ °C به ترتیب از ۰/۷۴۶، ۱/۳۰۰ و ۱/۲۴۵ تا ۰/۱۱۸، ۰/۴۰۳ و ۰/۵۹۲ کاهش یافته و این مقادیر در نسبت ۱۵ mL/g به ترتیب به ۰/۵۰۶، ۰/۵۲۰ و ۰/۹۵۵ رسیدند. تحقیقات انجام شده شاهد همین مدعاست که با افزایش نسبت حلال به خوراک، پارامتر حلالیت کاهش و میزان رسوب آسفالتین افزایش یافته و در نتیجه مقدار آسفالتین موجود در نفت آسفالتین زدایی شده کاهش می یابد [۳۴ و ۳۵].



شکل ۵ تأثیر برهم کنش متغیرها بر روی درصد وزنی آسفالتین باقیمانده برای حلال (الف) پنتان، (ب) هگزان و (ج) هپتان

تأثیر نسبت حلال به خوراک بر روی درصد وزنی آسفالتین در نفت آسفالتین زدایی شده

انتخاب پذیری عمل آسفالتین زدایی به طور قابل توجهی می تواند با افزایش نسبت حلال بهبود

### تأثیر دما بر روی درصد وزنی آسفالتین باقیمانده در نفت آسفالتین‌زدایی شده

اثر دمای عملیات بر روی انتخاب‌پذیری استخراج، باعث تغییر توان حلال می‌شود. اگرچه تأثیر نوع خوراک‌ها و حلال‌ها ممکن است قابل توجه باشد اما دمای عملیاتی بالاتر منجر به کاهش کشش سطحی حلال و قدرت حلالیت آن می‌شود. برای حلال و خوراک داده‌شده با افزایش دمای عملیاتی، آسفالت نرم‌تر و بیشتر و بازده روغن آسفالت‌گیری شده کمتر خواهد شد. هنگامی که به حد فوق بحرانی می‌رسیم ممکن است ته‌نشینی کامل روغن صورت گیرد. در نتیجه، شرایط بحرانی حداکثر دمای عملیاتی ممکن را برای یک سیال داده‌شده فراهم می‌کند. بهینه کردن انتخاب‌پذیری استخراج به معنی در نظر گرفتن گرادیان دما است. در صورتی که نسبت حلال به خوراک ثابت باشد، با افزایش دما، میزان روغن استخراج‌شده، گرانیروی، کربن باقیمانده، فلزات، گوگرد و نیتروژن کاهش و دانسیته API و شاخص گرانیروی افزایش می‌یابد [۳۶]. با افزایش دمای استخراج، بازده نفت آسفالتین‌زدایی شده به مقدار کمی کاهش می‌یابد. از طرفی با افزایش دمای استخراج، انتخاب‌پذیری افزایش می‌یابد، در نتیجه ناخالصی نفت بدون آسفالتین نیز کاهش می‌یابد. علت تغییرات بسیار ناچیز نفت آسفالتین‌زدایی شده با دما این است که آلکان‌ها و هیدروکربن‌های اشباع‌شده تقریباً مستقل از دما هستند در نتیجه ضرایب اکتیویته آن‌ها نیز تقریباً مستقل از دماست. همچنین داده‌های تجربی برای ضرایب اکتیویته این گونه مخلوط‌ها وجود دارد که تغییرات بسیار ناچیزی را با دما نشان می‌دهد و این خود نتیجه وابستگی بسیار کم ضرایب برهم کنش دوتایی هیدروکربن‌ها به دماست. اما حلالیت اجزاء سنگین‌تر مثل آسفالتین‌ها تا حدودی به دما وابسته است و این وابستگی نسبت عکس دارد [۳۷]. به‌طور کلی فاکتورهایی که باعث افزایش دانسیته حلال شوند، ظرفیت حلال را برای حل

کردن روغن افزایش می‌دهند، این ظرفیت عموماً به حلالیت برمی‌گردد. در نتیجه کاهش دما منجر به افزایش دانسیته حلال شده و این خود باعث افزایش بازده روغن آسفالت‌گیری شده می‌شود. روابط دما-حلالیت برای برش‌های سنگین نفت در حلال‌های پارافینی سبک برخلاف انتظار عکس هم می‌باشد. چنانچه خلوص نفت آسفالتین‌زدایی شده مدنظر باشد می‌توان با افزایش دما خلوص آن را افزایش داد اما باید توجه داشت که افزایش دما، کاهش نفت آسفالتین‌زدایی شده را نیز به همراه دارد. برای جبران کاهش نفت آسفالتین‌زدایی شده می‌توان نسبت حلال به خوراک را افزایش داد. نتیجه کلی این است که انتخاب‌پذیری بسیار خوبی ایجاد شده و جداسازی بین نفت آسفالتین‌زدایی شده و آسفالت تقویت می‌شود [۳۸].

بنابر شکل ۴ افزایش دمای استخراج در محدوده مطالعاتی تأثیر مثبتی بر روی فرآیند می‌گذارد به‌طوری‌که با افزایش دمای استخراج از  $^{\circ}\text{C}$  ۱۵ تا  $^{\circ}\text{C}$  ۲۵ درصد وزنی آسفالتین در خلوص حلال‌های پنتان، هگزان و هپتان در نسبت حلال به خوراک  $10 \text{ mL/g}$  به ترتیب از  $0.676$ ،  $0.940$  و  $1.350$  تا  $0.118$ ،  $0.403$  و  $0.592 \text{ mL/g}$  کاهش یافته، درحالی‌که با افزایش بیشتر دمای استخراج از دمای محیط تا  $^{\circ}\text{C}$  ۳۵ روند نامحسوس کاهشی به ترتیب تا  $0.24$ ،  $0.28$  و  $0.25$  ادامه می‌یابد. در گزارش‌های موجود نیز مشاهده می‌شود که با افزایش دما درصد رسوب آسفالتین افزایش می‌یابد. یا به عبارتی، میزان آسفالتین موجود در نفت آسفالتین‌زدایی شده کاهش یافته که این حداقل میزان آسفالتین با افزایش تعداد کربن از حلال نرمال پنتان تا نرمال هپتان افزایش می‌یابد [۳۹].

تأثیر برهم‌کنش متغیرها بر روی درصد وزنی آسفالتین باقیمانده در نفت آسفالتین‌زدایی شده رفتار برهم‌کنشی متغیرهای مستقل و اثر هم‌زمان آن‌ها بر روی میزان درصد وزنی آسفالتین، در

قالب نمودارهای سه بعدی (شکل ۵) نشان داده شده است. منحنی های سطح پاسخ از معادله (۳) به دست آمدند که در شکل ۵ به تصویر کشیده شده اند. در نمودارهای سه بعدی میزان انحنای سطح به عنوان معیاری برای تعیین شدت برهم کنش بین دو متغیر در نظر گرفته می شود. انحنای بیشتر یک سطح، نشان دهنده برهم کنش شدیدتر بین دو متغیر خواهد بود. منحنی های سه بعدی نشان دهنده یک برهم کنش قوی بین دمای استخراج و نسبت حلال به خوراک ( $P = 0/0004$ ) هستند.

#### بهینه سازی و اعتبار سنجی آزمایشات

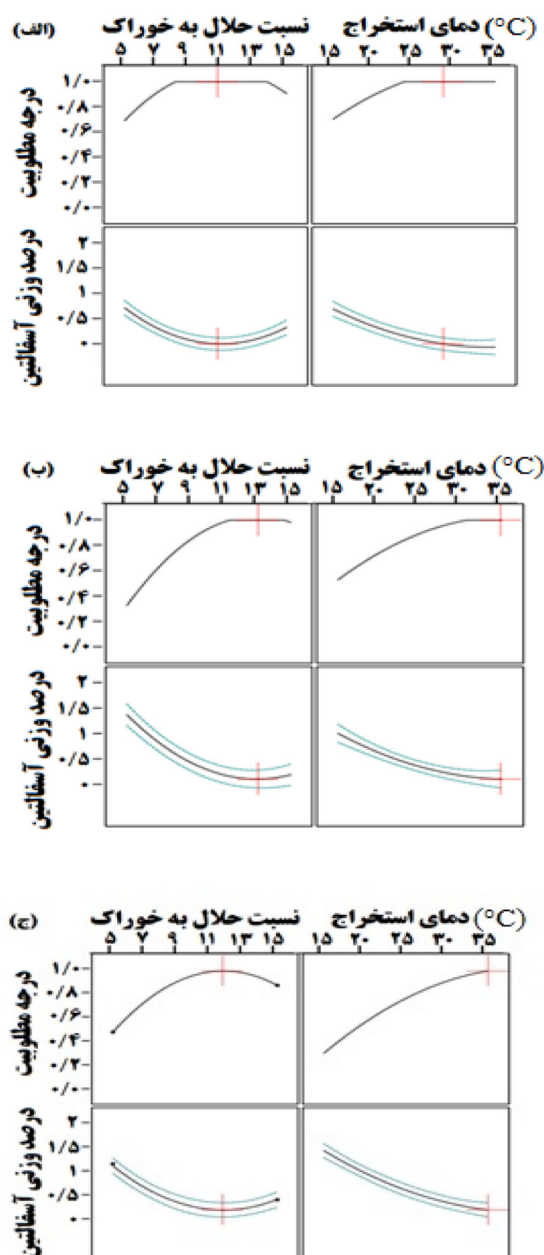
نرم افزار طراحی آزمایش می تواند شرایط بهینه پارامترها برای رسیدن به کمترین میزان درصد وزنی آسفالتین در محصول نفت آسفالتین زدایی شده به عنوان تابع هدف را، تعیین کند. بدین صورت که تمامی متغیرها در حالت بین محدوده عملیاتی و مقدار پاسخ در حالت کمینه قرار داده شده اند و درصد وزنی آسفالتین محصول استخراج، با درجه مطلوبیت ۱ به دست می آید [۴۰]. درصد وزنی آسفالتین بهینه شده آماری برای حلال های نرمال پنتان، هگزان و هپتان به ترتیب ۰/۰۰۲، ۰/۱۰۷ و ۰/۱۸۹ در نسبت حلال به خوراک ۱۰/۷، ۱۳ و ۱۱/۶ ml/g و دمای استخراج ۲۸/۵، ۳۴/۸ و ۳۵ °C به دست آمد (شکل ۶). به منظور تایید درستی مدل پیش بینی شده، یک آزمایش دیگر در شرایط بهینه پیشنهادی توسط نرم افزار انجام شد و درصد وزنی آسفالتین بهینه آزمایشگاهی در شرایط مشابه عملیاتی به ترتیب ۰/۰۰۲۴، ۰/۱ و ۰/۲۱ حاصل شد که با خطای ۰/۱۶٪، ۷٪ و ۱۰٪ تطابق خوبی میان داده آزمایشگاهی و مدل آماری وجود دارد.

همان طور که از شکل ۶ مشاهده می شود مقدار آسفالتین موجود در نفت آسفالتین زدایی شده استخراج شده توسط نرمال پنتان از بقیه کمتر است. مشاهدات نشان می دهد که هرچقدر تعداد اتم های کربن نرمال آلکان ها بیشتر باشد

نقطه جوش آن ها افزایش یافته و باعث حل شدن بیشتر آسفالتین در خود شده و در نتیجه رسوب آسفالتین کمتری تشکیل می شود. به طور کلی هرچه حلال سبک تر باشد میزان آسفالتین جدا شده افزایش می یابد. مطالعات صورت گرفته نیز این نتیجه به دست آمده را تایید می کنند که با افزایش تعداد کربن های نرمال آلکان و یا در واقع افزایش وزن مولکولی آن ها، درصد رسوب آسفالتین کاهش یافته و مقدار آسفالتین موجود در نفت آسفالتین زدایی شده افزایش می یابد [۴۱-۴۴]. در شرایط بهینه اقتصادی که شامل در نظر گرفتن صرفه جویی در مواد شیمیایی (کمینه مقدار نسبت حلال به خوراک)، حداقل مصرف انرژی (نزدیکترین دما به محیط) و همچنین تأمین کردن شرط حداقل میزان درصد وزنی آسفالتین در نفت آسفالتین زدایی شده با توجه به استاندارد خوراک ورودی به واحد RFCC ( $< 0/5$ ) می باشد؛ درصد وزنی آسفالتین برای حلال های نرمال پنتان، هگزان و هپتان به ترتیب ۰/۴۵۱، ۰/۴۴۷ و ۰/۵۸۴ در نسبت حلال به خوراک ۶/۵، ۹/۵ و ۱۱ mL/g و دمای استخراج ۲۵ °C (دمای محیط) به دست آمد. از آنجا که حلال نرمال هگزان از محصولات پالایشگاه شازند است ادامه تحقیق با این حلال پیش برده شده است.

#### تأمین الزامات مشخصات خوراک ورودی به واحد شکست کاتالیستی باقیمانده ها و تولید قیر با استاندارد ۶۰-۷۰

مقدار درصد وزنی آسفالتین در نفت آسفالتین زدایی شده، به دست آمده از حلال نرمال هگزان (در دمای ۲۵ °C و نسبت حلال به خوراک ۹/۵ mL/g) بعد از استخراج، متناسب با خوراک واحد RFCC می باشد. اما برای اینکه بقیه مشخصات این محصول متناسب با خوراک RFCC باشد، از تقطیر در خلأ استفاده کرده ایم، که در این مرحله جداسازی بازدهی تولید محصول نفت آسفالتین زدایی شده از خوراک تقطیر ۹۰٪ می باشد و ۱۰٪ آن نیز به باقیمانده آسفالتنی تبدیل می گردد.



شکل ۶ شرایط عملیاتی بهینه بر اساس تابع مطلوبیت (الف) پنتان، (ب) هگزان و (ج) هپتان

تست درجه نفوذ، بقیه تست‌های گرفته‌شده کاملاً متناسب با قیر ۶۰-۷۰ است (جدول ۷). برای حل این مشکل می‌توان از برش‌های مختلف نفتی استفاده کرد که در اینجا از خود باقیمانده برج تقطیر در خلأ استفاده شد، این کار نه تنها مشکل درجه نفوذ قیر تولیدی را حل می‌کند بلکه منجر به کوچک‌تر شدن واحد صنعتی تولید نفت آسفالت‌زدایی شده می‌شود (شکل ۱).

با استفاده از تقطیر در خلأ مشاهده شد که مشخصات نفت آسفالتین‌زدایی شده متناسب با خوراک واحد RFCC است. بجز درصد وزنی گوگرد، که این مشکل را هم می‌توان در مخازن خوراک این واحد با اضافه کردن ترکیبات کم گوگرد پالایشگاه برطرف نمود. همچنین بازدهی نفت آسفالتین‌زدایی شده نهایی به‌دست‌آمده ۴۸٪ می‌باشد (جدول ۶). نتایج تست‌های قیر از باقیمانده آسفالتینی حاصل از استخراج و تقطیر در خلأ نشان می‌دهد به‌جز



جدول ۶ مقایسه مشخصات نفت آسفالتین زدایی شده و خوراک RFCC

مشخصات	نفت آسفالتین زدایی شده بعد از استخراج	نفت آسفالتین زدایی شده بعد از تقطیر	خوراک RFCC
چگالی ( $\text{g/cm}^3$ )	۰/۹۶۱۰	۰/۹۴۱۳	۰/۹۴۰۱
آسفالتین (%wt)	۰/۴۴۷	<۰/۵	<۰/۵
کربن باقیمانده (%wt)	۱۳/۶	<۱	۴/۴۵
گوگرد (%wt)	۲/۹۵	۱/۹۵	۱/۰۱
نیکل (ppm)	۱۷	۵	۵/۹
وانادیوم (ppm)	۳۵	۷	۸/۷

جدول ۷ مقایسه مشخصات باقیمانده آسفالتینی و قیر استاندارد ۶۰-۷۰

مشخصات	باقیمانده آسفالتینی	اختلاط باقیمانده آسفالتینی و			قیر ۶۰-۷۰
		VB %۵۰	VB %۱۰۰	VB %۳۰	
چگالی ( $\text{kg/m}^3$ )	۱۰۴۵	۱۰۴۲	۱۰۳۶	۱۰۳۰	۱۰۱۰-۱۰۶۰
درجه نفوذ (mm/10)	۹	۲۲	۳۳	۶۱	۶۰-۷۰
نقطه نرم شدن ( $^{\circ}\text{C}$ )	۵۹/۷	۵۹/۸	۵۷/۳	۵۵/۵	۴۹-۵۶
کشش پذیری (cms)	۱۳۴	+۱۵۰	+۱۵۰	+۱۵۰	۱۰۰ min
اتلاف به دلیل حرارت (%wt)	-۰/۱۰۱	-۰/۰۱۲	-۰/۰۱۵	۰/۰۱۹	۰/۲ max
کاهش نفوذ پس از حرارت دهی (%)	۵/۳۷	۵/۸۲	۶/۷۰	۷/۸۵	۲۰ max
نقطه اشتعال ( $^{\circ}\text{C}$ )	۳۵۵	۳۵۲	۳۴۶	۳۴۰	۲۵۰ min
حلالیت در کربن دی سولفید (%wt)	۹۹/۸۶	۹۹/۸۲	۹۹/۸۰	۹۹/۷۵	۹۹/۵ min
تست لکه	-	-	-	-	Negative

• درصد وزنی آسفالتین بهینه شده آماری برای حلال های نرمال پنتان، هگزان و هپتان به ترتیب ۰/۰۰۲، ۰/۱۰۷ و ۰/۱۸۹ در نسبت حلال به خوراک ۱۰/۷، ۱۳ و ۱۱/۶ mL/g و دمای استخراج ۲۸/۵، ۳۴/۸ و  $^{\circ}\text{C}$  ۳۵ به دست آمد.

• درصد وزنی آسفالتین باقیمانده بهینه آزمایشگاهی در شرایط مشابه عملیاتی به ترتیب ۰/۰۰۲۴، ۰/۱ و ۰/۲۱ حاصل شد که با خطای ۰/۱۶، ۰/۷ و ۰/۱۰ تطابق خوبی میان داده آزمایشگاهی و مدل آماری وجود دارد.

• مطالعه آماری نشان داد که مدل درجه دوم پاسخ برای پارامترهای مورد مطالعه قابل قبول هستند ( $P\text{-value} < ۰/۰۰۰۱$ ) و مطابقت زیادی ( $R^2 = ۰/۹۹۵۳$ ) بین مدل آماری (طراحی آزمایش) و داده های

برای رفع مشکل درجه نفوذ باقیمانده آسفالتینی، ابتدا از اختلاط ۳۰ درصد وزنی باقیمانده برج تقطیر در خلأ با باقیمانده آسفالتینی استفاده شد که عدد درجه نفوذ قیر به ۲۲ mm افزایش پیدا کرد، سپس اختلاط ۶۰ درصد وزنی و در نهایت اختلاط ۱۰۰ درصد وزنی باقیمانده برج تقطیر در خلأ با باقیمانده آسفالتینی تست شد که عدد درجه نفوذ قیر به ۶۱ mm افزایش یافت.

### نتیجه گیری

در این کار جداسازی آسفالتین از باقیمانده برج تقطیر در خلأ با استفاده از حلال های صنعتی پنتان، هگزان و هپتان بررسی شد که نتایج زیر حاصل شد:

گوگردی و فلزات نیکل و وانادیوم به ترتیب کمتر از ۱٪ و ۱/۹۵ درصد وزنی، ۵ ppm و ۷ ppm به دست آمدند که متناسب با خوراک واحد RFCC می‌باشد. • از اختلاط باقیمانده آسفالتینی به‌دست‌آمده با نسبت ۱۰۰ درصد وزنی باقیمانده برج تقطیر در خلأ، قیر استاندارد ۶۰-۷۰ حاصل شد.

### تشکر و قدردانی

نویسندگان مقاله از واحد تحقیق و توسعه، اداره مهندسی فرآیند و آزمایشگاه شرکت پالایش نفت شازند به دلیل تامین اعتبار مالی و همکاری در انجام این پژوهش بسیار سپاسگزارند.

آزمایشگاهی وجود دارد. به‌علاوه، طبق آنالیز واریانس، دمای استخراج و برهم‌کنش درجه دوم پارامتر نسبت حلال به خوراک، تأثیر چشمگیری بر درصد وزنی آسفالتین دارند.

• در شرایط بهینه اقتصادی، درصد وزنی آسفالتین برای حلال‌های نرمال پنتان، هگزان و هپتان به ترتیب ۰/۴۵۱، ۰/۴۴۷ و ۰/۵۸۴ در نسبت حلال به خوراک ۶/۵، ۹/۵ و ۱۱ mL/g و دمای استخراج ۲۵ °C (دمای محیط) به دست آمد.

• بر روی نفت آسفالتین زدایی شده حاصل از استخراج حلال نرمال هگزان، تقطیر در خلأ انجام گرفت و میزان باقیمانده کربنی کنرادسون، ترکیبات

### مراجع

- [1]. Jafari Behbahani T, Talachi H, Taymori M (2009) Study of liquid solvent deasphalting of heavy residues, *International Journal of Industrial Engineering and Production Management*, 19: 33-39.
- [2]. Aske N (2002) Characterisation of crude oil components, asphaltene aggregation and emulsion stability by means of near infrared spectroscopy and multivariate analysis, *Norwegian University of Science and Technology*, 49.
- [3]. Fakher S, Ahdaya M, Elturki M, Imqam A (2019) Critical review of asphaltene properties and factors impacting its stability in crude oil, *Journal of Petroleum Exploration and Production Technology*, 1-18.
- [4]. Priyanto S, Mansoori G A, Suwono A (2001) Measurement of property relationships of nano-structure micelles and coacervates of asphaltene in a pure solvent, *Chemical Engineering Science*, 56: 6933-6939.
- [5]. Speight J. (2004) *Petroleum Asphaltenes-Part 1: Asphaltenes, resins and the structure of petroleum*, *Oil and Gas Science and Technology*, 59: 467-477.
- [6]. Ancheyta J, Trejo F, Rana M S (2010) *Asphaltenes: chemical transformation during hydroprocessing of heavy oils*, CRC press.
- [7]. Andersen S I, Speight J G (2001) *Petroleum resins: separation, character, and role in petroleum*, *Petroleum Science and Technology*, 19: 1-34.
- [8]. Klein G C, Kim S, Rodgers R P, Marshall A G, Yen A (2006) Mass spectral analysis of asphaltenes. II. Detailed compositional comparison of asphaltenes deposit to its crude oil counterpart for two geographically different crude oils by ESI FT-ICR MS, *Energy and Fuels*, 20: 1973-1979.
- [9]. Processing H (2004) *Refining processes handbook*, Houston, TX: Gulf Publishing Company.
- [10]. Motaghi M, Shree K, Krishnamurthy S (2010) Consider new methods for bottom of the barrel processing: Part 1: CLEAN FUELS, *Hydrocarbon Processing (International ed.)*, 89: 35-40.
- [11]. Iqbal R, Khan A, Eng O, Floyd R (2008) Unlocking current refinery constraints, *Petroleum technology quarterly*, 13.
- [12]. Agency U S E P (2013) *Study of Selected Petroleum Refining Residuals: Industry Study*, BiblioGov.
- [13]. Anderson M J, Whitcomb P J (2016) *DOE simplified: practical tools for effective experimentation*, CRC press.
- [14]. Maqbool T, Srikiratiwong P, Fogler H S (2011) Effect of temperature on the precipitation kinetics of asphaltenes, *Energy and Fuels*, 25: 694-700.
- [15]. Aske N, Kallevik H, Johnsen E E, Sjöblom J (2002) Asphaltene aggregation from crude oils and model systems studied by high-pressure NIR spectroscopy, *Energy and Fuels*, 16: 1287-1295.
- [16]. Z Zhang, Peng J, Srinivasakannan C, Zhang Z, Zhang L, Fernández Y, Menéndez J (2010) Leaching zinc from spent catalyst: Process optimization using response surface methodology, *Journal Of Hazardous Materials*, 176: 1113-1117.
- [17]. Junior L C R, Ferreira M S, da Silva Ramos A C (2006) Inhibition of asphaltene precipitation in Brazilian crude oils using new oil soluble amphiphiles, *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 51: 26-36.
- [18]. Pandu R G (2016) *Multi-objective optimization: techniques and applications in chemical engineering*, World Scientific.

- [19]. Duan X, Zhang Z, Srinivasakannan C, Wang F, Liang J (2014) Regeneration of spent catalyst from vinyl acetate synthesis as porous carbon: Process optimization using RSM, *Chemical Engineering Research and Design*, 92: 1249-1256.
- [20]. Hou X, Xiao F, Wang J, Amirkhanian S (2018) Identification of asphalt aging characterization by spectrophotometry technique, *Fuel*, 226: 230-239.
- [21]. Nadkarni R, Nadkarni R (2007) Guide to ASTM test methods for the analysis of petroleum products and lubricants, ASTM International West Conshohocken.
- [22]. ASTM D (2013) Standard test method for penetration of bituminous materials, USA, ASTM International.
- [23]. ASTM D (2014) Standard test method for softening point of bitumen (ring-and-ball apparatus), American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA, USA.
- [24]. ASTM D (2017) Standard test method for ductility of asphalt materials, American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA, USA.
- [25]. Hassan N A, Ruzi N A, Shukry N A M, Jaya R P, Hainin M R, Kamaruddin N H M, Abdullah M E (2019) Physical properties of bitumen containing diatomite and waste engine oil, *Malaysian Journal of Fundamental and Applied Sciences*, 15: 528-531.
- [26]. ASTM D (2002) Standard test method for flash and fire points by Cleveland open cup tester, *Annual Book of Standards*.
- [27]. George E, Hunter J S, Hunter W G, Bins R, Kirlin K IV, Carroll D (2005) Statistics for experimenters: design, innovation, and discovery, Wiley New York, NY, USA.
- [28]. Tarpey T (2000) A note on the prediction sum of squares statistic for restricted least squares, *The American Statistician*, 54: 116-118.
- [29]. Bingham N H, Fry J M (2010) Regression: Linear models in statistics, Springer Science and Business Media.
- [30]. Draper N, Smith H (2014) Applied Regression Analysis, Hoboken; Somerset, in, NJ: John Wiley and Sons.
- [31]. Bezerra M A, Santelli R E, Oliveira E P, Villar L S, Escalera L A (2008) Response surface methodology (RSM) as a tool for optimization in analytical chemistry, *Talanta*, 76, 965-977.
- [32]. Telmadarreie A, Trivedi J (2017) Dynamic behavior of asphaltene deposition and distribution pattern in fractured porous media during hydrocarbon solvent injection: pore-level observations, *Energy and Fuels*, 31: 9067-9079.
- [33]. Long J, Shen B, Ling H, Zhao J, Lu J (2011) Novel solvent deasphalting process by vacuum residue blending with coal tar, *Industrial and engineering chemistry research*, 50, 11259-11269.
- [34]. Zendeheboudi S, Shafiei A, Bahadori A, James L A, Elkamel A, Lohi A (2014) Asphaltene precipitation and deposition in oil reservoirs—Technical aspects, experimental and hybrid neural network predictive tools, *Chemical Engineering Research and Design*, 92, 857-875.
- [35]. Verdier S, Carrier H, Andersen S I, Daridon J L (2006) Study of pressure and temperature effects on asphaltene stability in presence of CO<sub>2</sub>, *Energy and Fuels*, 20: 1584-1590.
- [36]. Hussain H K, Ali S M, Ali Y M (2011) Upgrading sharky baghdad heavy crude oil, *Al-Khwarizmi Engineering Journal*, 7: 19-29.
- [37]. Wang Y, Chen Z, Shen B (2012) The Dual-purpose of solvent deasphalting integrated with FCC for production of qualified pavement asphalt and FCC feedstock to realize its maximum potential, *Energy Sources, Part A: Recovery, Utilization, and Environmental Effects*, 34: 1187-1195.
- [38]. Rezaei N, Mohammadzadeh O, Chatzis I (2010) Warm VAPEX: a thermally improved vapor extraction process for recovery of heavy oil and bitumen, *Energy and Fuels*, 24: 5934-5946.
- [39]. Myers R H, Montgomery D C, Anderson-Cook C M (2016) Response surface methodology: process and product optimization using designed experiments, John Wiley and Sons.
- [40]. Candiotti L V, De Zan M M, Cámara M S, Goicoechea H C (2014) Experimental design and multiple response optimization, using the desirability function in analytical methods development, *Talanta*, 124: 123-138.
- [41]. Gafonova O V, Yarranton H W (2001) The stabilization of water-in-hydrocarbon emulsions by asphaltenes and resins, *Journal of Colloid and Interface Science*, 241: 469-478.
- [42]. Hu Y F, Guo T M (2001) Effect of temperature and molecular weight of n-alkane precipitants on asphaltene precipitation, *Fluid Phase Equilibria*, 192: 13-25.
- [43]. Udourioh G A, Ibezim-Ezeani M I, Ofodile S E (2014) Comparative investigation of heavy organics precipitation from crude oil using binary mixtures and single n-alkane organic solvents, *Journal of Petroleum and Gas Exploration Research*, 4: 53-59.
- [44]. Tobrise O O, Ofodile S E, Osu C, Achugasim O (2016) Comparative evaluation of asphaltene precipitation from nigerian crude oil residue using intermediate and long chain single and binary n-alkane solvent mixtures, *IOSR Journal of Applied Chemistry*, 9: 82-86.

# طراحی سیستم کنترل پیشبین غیر خطی مبتنی بر مدل برای فرازآوری با استفاده از پمپ الکتریکی درون چاهی

فریدالدین میرزایی هرسینی و مهدی نظری صارم\*

گروه مهندسی نفت، معدن و مواد، دانشکده عمران و منابع زمین، دانشگاه آزاد اسلامی واحد تهران مرکزی، ایران

تاریخ دریافت: ۱۴۰۰/۱۱/۱۸ تاریخ پذیرش: ۱۴۰۱/۰۲/۱۱

## چکیده

فرازآوری مصنوعی با پمپ الکتریکی درون چاهی یکی از روش‌های متداول چاه محور برای افزایش یا نگهداشت تولید از چاه است. به منظور افزایش بازدهی، رعایت محدودیت‌های عملیاتی و ایمنی و کاهش زمان و هزینه تعمیرات به سیستم کنترل مناسب نیاز است. کنترل فرایند فرازآوری با توجه به تعداد پارامترهای عملیاتی و محدودیت‌های ایمنی مجموعه تولید شامل مخزن، چاه و پمپ، کاری چالش برانگیز است. روش‌های مختلفی برای کنترل فرازآوری با پمپ الکتریکی درون چاهی پیشنهاد شده است. کنترل مبتنی بر این روش‌ها یا به علت استفاده از تقریب خطی برای مدل‌سازی فرایند فرازآوری از دقت کافی برخوردار نیستند یا به دلیل استفاده از روابط دینامیک و حل آن‌ها برای شبیه‌سازی فرایند و بار سنگین محاسباتی قابلیت پیاده‌سازی بر روی سخت‌افزارهای مرسوم را ندارند. در این تحقیق یک سیستم کنترل پیشبین غیر خطی متناسب با اهداف کنترلی فرایند فرازآوری با پمپ الکتریکی درون چاهی و با در نظر گرفتن محدودیت‌های عملیاتی و ایمنی توسعه داده شده است. علاوه بر این به منظور کاهش بار محاسباتی و با در نظر گرفتن طبیعت غیر خطی فرایند، از یک مدل غیر خطی با ساختار مبتنی بر شبکه‌های عصبی به عنوان مدل پیشبین در ساختار کنترل کننده استفاده شده است. به منظور بررسی کارایی کنترل کننده و مدل توسعه داده شده، عملکرد کنترل کننده بر روی چاه شماره ۸۸ میدان اهواز- آسماری منتخب نصب پمپ الکتریکی درون چاهی ارزیابی شده است. کنترل کننده توسعه داده شده به خوبی رفتار مرجع را پیروی کرده و از طرف دیگر به خوبی اغتشاشات ورودی به سیستم را جبران‌سازی می‌کند. همچنین طراحی کنترل کننده به گونه‌ای است که محدودیت‌های عملیاتی و ایمنی در ساختار کنترل کننده وارد شده و رفتار سیستم به گونه‌ای تنظیم می‌شود که این محدودیت‌ها نقض نشوند.

**کلمات کلیدی:** فرازآوری مصنوعی، پمپ الکتریکی درون چاهی، شبکه عصبی، کنترل کننده

\*مسئول مکاتبات

mah.nazari\_sarem@iauctb.ac.ir

آدرس الکترونیکی

شناسه دیجیتال: (DOI:10.22078/PR.2022.4734.3124)

## مقدمه

پمپ الکتریکی درون چاهی (ESP) یکی از محبوب‌ترین روش‌های فراآوری مصنوعی مورد استفاده در صنایع نفت و گاز محسوب می‌شود. یک پمپ الکتریکی درون چاهی<sup>۱</sup> متشکل از یک پمپ سانتریفیوژی چند مرحله‌ای است که به منظور افزایش فشار سیال تولیدی چاه و تولید با دبی مطلوب در عمق چند صد متری تا چند هزار متری دورن چاه نصب می‌شود. با وجود بهره‌وری بالای فراآوری با پمپ ESP، استفاده از این روش در محدوده وسیعی از شرایط عملیاتی به علت ناحیه کاری محدود و غیرمنعطف پمپ ESP ممکن نبوده و عملکرد طولانی مدت پمپ در خارج از محدوده کاری تعیین شده می‌تواند منجر به افت شدید عملکرد و وارد شدن آسیب مکانیکی غیر قابل جبران به پمپ گردد [۱]. امروزه در بسیاری از چاه‌های با اجرای ESP از راه اندازه‌های سرعت متغیر<sup>۲</sup> استفاده می‌شود. استفاده از راه اندازه سرعت متغیر به بهره‌بردار اجازه می‌دهد متناسب با شرایط عملیاتی و بهره‌برداری، سرعت چرخش پمپ و در نتیجه نقطه عملکرد پمپ را تغییر داده تا بتوان از پمپ در ناحیه عملیاتی وسیع‌تری استفاده کرد [۴-۲]. کنترل دستی فرآیند فراآوری با توجه به تعداد پارامترهای عملیاتی و محدودیت‌های ایمنی مجموعه تولید شامل مخزن، چاه و پمپ، کاری چالش برانگیز است [۵]. تخمین زده شده است که در حدود ۲۳٪ از خرابی‌های پمپ ESP به علت خطای اپراتور در کنترل پمپ رخ می‌دهد. در نتیجه، سیستم کنترل اتوماتیک جهت کنترل و نظارت بر عملیات فراآوری برای اطمینان از عملکرد مطلوب و رعایت محدودیت‌های عملیاتی و ایمنی مورد نیاز است [۶]. روش‌های مختلفی برای کنترل فراآوری با پمپ ESP پیشنهاد شده است. شارما و همکارش از کنترل‌کننده‌های تناسبی-انتگرالی (PI) برای کنترل سرعت پمپ و بازشدگی شیر سرچاهی به منظور کنترل دبی سیال تولیدی استفاده کردند اما در طراحی آن‌ها هدف اصلی،

بهینه‌سازی شرایط تولید بوده و اثر ورود اغتشاشات به مجموعه فراآوری در نظر گرفته نشده بود [۷]. بایندر و همکارانش مدلی دینامیک برای فراآوری با پمپ ESP توسعه دادند و از مدل توسعه داده شده در طراحی کنترل‌کننده پیش‌بین خطی<sup>۳</sup> (LMPC) استفاده کردند. کنترل فشار ورودی پمپ و کاهش مصرف انرژی اهداف اصلی سیستم کنترل طراحی شده بود [۸]. پاولو و همکارانش در مطالعه‌ای [۶] چالش‌های طراحی سیستم کنترل برای فرآیند فراآوری را بررسی کردند و یک سیستم کنترل LMPC برای فراآوری پمپ ESP پیشنهاد دادند. کرشنامورثی و همکارانش نیز برای کنترل فراآوری با پمپ ESP از کنترل LMPC استفاده کردند. آن‌ها برای کاهش اتلاف انرژی، شیر سرچاهی را تا بیشترین مقدار ممکن باز نگه داشتند [۹].

کنترل‌کننده پیشنهادی پاولو، بایندر و کرشنامورثی از مدل‌های خطی برای کل ناحیه عملکردی پمپ استفاده می‌کند. با توجه به ذات غیرخطی فرآیند فراآوری ESP، استفاده از مدل خطی سبب می‌شود تعدادی از دینامیک‌های فرآیند برداشت نشده و سیستم کنترل در صورت تغییرات بزرگ در ناحیه عملیاتی به درستی عمل نکند. دلو و همکارانش برای رفع این مشکل از کنترل LMPC با راهبرد انطباقی<sup>۴</sup> استفاده کردند [۱۰]. در طرح پیشنهادی آن‌ها، برای نواحی مختلف عملیاتی پمپ مدل‌های مختلفی توسعه داده شد و در صورت ورود پمپ به هر ناحیه سیستم کنترل از مدل مربوط به همان ناحیه برای پیش‌بینی استفاده می‌کرد.

اورم و همکارش برای کنترل پمپ‌های ایستگاه‌های پمپاژ زیر دریایی که مشابه فرآیند فراآوری است یک سیستم کنترل پیش‌بین غیرخطی<sup>۵</sup> (NMPC) توسعه دادند [۱۱].

1. Electrical Submersible Pump

2. Variable Speed Drive

3. Linear Model Predictive Controller

4. Adaptive

5. Nonlinear Model Predictive Controller



انتها عملکرد مدل توسعه داده شده و کنترل کننده طراحی شده بر روی یک چاه منتخب نصب پمپ ESP ارزیابی می‌شود.

### بیان مسئله کنترل

هدف اصلی از کنترل مجموعه فراآوری افزایش سود با بیشینه کردن نرخ تولید و کمینه کردن توان مصرفی است درحالی که محدودیت‌های عملیاتی و ایمنی چاه و پمپ حفظ شده، به پمپ آسیبی نرسیده و عملیات بهره‌برداری از چاه با اخلال مواجه نشود. از آنجایی که نرخ تولید چاه به‌طور مستقیم به فشار کف چاه ( $P_{bh}$ ) وابسته است، یکی از روش‌های اصلی کنترل پمپ ESP، کنترل فشار ورودی پمپ ( $P_{in}$ ) مطابق یک رفتار مرجع ( $P_{in}^{Ref}$ ) است، درحالی که توان مصرفی پمپ (BHP) کمینه شده یا به یک بازه مشخص محدود شده باشد.

$$P_{in} \rightarrow P_{in}^{Ref} \quad (1)$$

$$\text{minimize } BHP \text{ or } BHP \leq BHP_{max} \quad (2)$$

در کنار این دو هدف اصلی نیاز است قیود و محدودیت‌های زیر نیز در نظر گرفته شوند.

• هد تولیدی پمپ از مقدار قابل تحمل پمپ بیشتر نباشد.

$$P_{ESP} \leq P_{ESP}^{Max} \quad (3)$$

• سرعت چرخش پمپ در بازه طراحی شده باشد.

$$r_{min} \leq r \leq r_{max} \quad (4)$$

• مقدار بازشدگی شیر جهت کاهش اتلاف انرژی بیشینه باشد.

$$S \rightarrow S_{max} \quad (5)$$

• نرخ تغییرات سرعت پمپ و سرعت باز و بسته شدن شیر به دلیل محدودیت‌های مکانیکی، محدود است.

$$\begin{aligned} |\Delta r| &\leq \Delta r_{max} \\ |\Delta s| &\leq \Delta s_{max} \end{aligned} \quad (6)$$

به منظور اعمال کنترل روی فرآیند فراآوری، دو ورودی کنترلی در مجموعه فراآوری در نظر گرفته شده است.

آن‌ها از مدل غیرخطی به دست آمده از روابط دینامیک حاکم بر عملکرد پمپ و حل مستقیم این روابط به عنوان مدلی برای پیش‌بینی رفتار سیستم در کنترل کننده استفاده کردند. همان‌طور که شرح داده شد، اکثر سیستم‌های کنترل پیشنهاد شده بر پایه مدلی خطی از فرآیند فراآوری طراحی شده‌اند. استفاده از تقریب خطی در طراحی کنترل کننده با توجه به ماهیت غیرخطی فرآیند فراآوری در صورت انحراف از شرایط طراحی، تغییر نسبتاً بزرگ پارامترهای عملیاتی و یا ورود اغتشاشات بزرگ به سیستم سبب شکست کنترل کننده شده و فرآیند رفتاری نامطلوب یا پیش‌بینی نشده از خود نشان می‌دهد که می‌تواند سبب مخاطرات ایمنی شود. در دسته دیگری از کنترل کننده‌ها از مدل‌های جبری و دیفرانسیلی برای مدل‌سازی فرآیند استفاده شده است. گرچه دقت این دسته از مدل‌ها بسیار بالاست اما بار محاسباتی بالای آن‌ها، پیاده‌سازی کنترل کننده طراحی شده با این روش بر روی سخت‌افزارهای مرسوم را غیرعملی می‌کند.

هدف این تحقیق، توسعه یک سیستم کنترل جهت پاسخ‌گویی مناسب به نیازمندی‌های کنترلی فرآیند فراآوری ESP است. با توجه به طبیعت غیرخطی فرآیند فراآوری، چند متغیره بودن سیستم و با در نظر گرفتن چند هدفه بودن مسئله کنترل، کنترل کننده پیش‌بین غیرخطی مبتنی بر مدل به عنوان گزینه مناسب انتخاب شده است. جهت رعایت محدودیت‌های ایمنی و عملیاتی، قیود مختلف در ساختار کنترل کننده تعریف شده است. همچنین به منظور کاهش بار محاسباتی کنترل کننده از مدل دینامیک غیرخطی NARX و ساختار شبکه‌های عصبی کوچک در ساختار کنترل کننده و بخش پیش‌بینی استفاده می‌شود. استفاده از مدل و کنترل کننده غیرخطی سبب می‌شود که سیستم تحت کنترل تحت شدیدترین اغتشاشات و تغییرات نیز به خوبی رفتار مرجع را دنبال کرده و اغتشاشات را جبران‌سازی کند. در

به صورت مجموع انحراف رفتار پیش‌بینی شده سیستم  $\hat{y}_p(t)$  از رفتار مرجع  $y_{ref}(t)$  در بازه افق پیش‌بینی  $n_p$  و میزان انرژی مصرفی برای کنترل سیستم یا به عبارت دیگر، تغییرات سیگنال کنترل  $\Delta u(t)$  در بازه افق کنترل  $n_u$  مدل می‌شود.

(۷)

$$\pi(u) = \sum_{i=n_1}^{n_p} \lambda_1(i) [y_{ref}(t+i) - \hat{y}_p(t+i|t)]^2 +$$

$$\sum_{i=1}^{n_u} \lambda_2(i) [\Delta u(t+i-1)]^2$$

به منظور محاسبه سیگنال کنترلی  $u(t)$  در هر لحظه نیاز است با کمک روش‌های بهینه‌سازی، مسئله (۸) تحت قیود غیر خطی (۹) حل کنیم و سپس خروجی کنترلی محاسبه شده را به سیستم اعمال کنیم.

$$\min_u \pi(u) \quad (۸)$$

$$\begin{cases} y_{\min} \leq y(t) \leq y_{\max} \\ u_{\min} \leq u(t) \leq u_{\max} \\ \Delta u_{\min} \leq \Delta u(t) \leq \Delta u_{\max} \end{cases} \quad (۹)$$

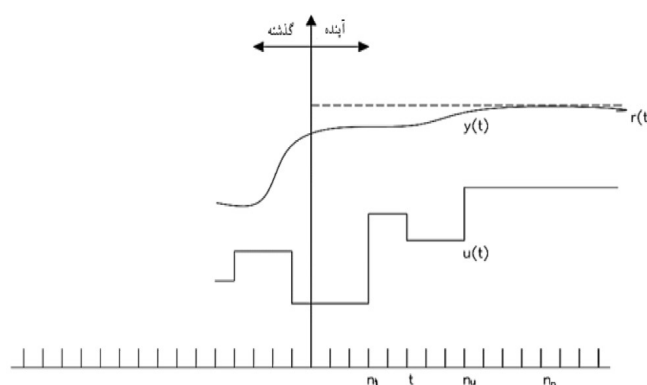
### تخمین مدل غیرخطی

همان‌طور که گفته شد، فرآیند فرازآوری با پمپ ESP یک فرآیند دینامیک غیر خطی است. از طرف دیگر برای پیش‌بینی رفتار سیستم تحت سناریوهای مختلف در کنترل‌کننده نیاز به یک مدل از سیستم تحت بررسی داریم. استفاده از مدل‌های تحلیلی و حل روابط دیفرانسیل حاکم بر آن‌ها کاری بسیار

اولین ورودی، فرکانس تغذیه موتور کوپل شده به پمپ ESP یا سرعت چرخش پمپ (r) می‌باشد. ورودی دوم میزان بازشدگی شیر خفه‌کننده سرچاهی<sup>۱</sup> (s) است. در نتیجه برای کنترل فرآیند فرازآوری نیاز به کنترل‌کننده‌ای چندمتغیره، چندهدفه و با قابلیت در نظر گرفتن قیود و محدودیت‌ها داریم که بتواند به‌خوبی نسبت به تغییرات مرجع پاسخ داده و اغتشاشات ورودی به سیستم را جبران کند.

### کنترل‌کننده

با توجه به نیازمندی‌های کنترلی و غیرخطی بودن فرآیند فرازآوری، در این تحقیق کنترل‌کننده پیش‌بین غیر خطی مبتنی بر مدل (NMPC) پیشنهاد شده است. کنترل‌کننده NMPC، یک نمونه از روش‌های کنترل پیشرفته است که در آن کنترل‌کننده با استفاده از مدل دینامیک غیرخطی از فرآیند تحت کنترل، خروجی سیستم را برای بازه افق پیش‌بینی  $n_p$  در هر لحظه  $t$  محاسبه می‌کند. سپس با توجه به ملاک مشخص و با در نظر گرفتن محدودیت‌های سیستم، رفتار مجموعه تحت سناریوهای مختلف را پیش‌بینی کرده، بهینه‌ترین ورودی کنترلی را انتخاب کرده و به سیستم اعمال می‌کند [۱۲ و ۱۳]. راهبرد کنترل‌کننده پیش‌بین در شکل ۱ نمایش داده شده است. تابع هدف در کنترل‌کننده NMPC معمولاً مطابق رابطه ۷



شکل ۱ راهبرد کنترل‌کننده پیش‌بین

تعیین‌کننده رفتار شبکه است. از نقاط قوت شبکه‌های عصبی آموزش‌پذیری آن‌ها است به این معنی که با ارائه مجموعه مثالی از داده‌های ورودی و خروجی یک سیستم، یک شبکه عصبی را می‌توان به گونه‌ای آموزش داده که رفتار مشابه سیستم اصلی را در خروجی برای ورودی‌های مشابه تولید کند. از طرف دیگر، شبکه‌های عصبی پس از آموزش دیدن قادر به تعمیم نتایج یادگیری برای ورودی‌های دیده نشده هستند. در واقع، یک شبکه عصبی در کنار حافظه، قدرت تعمیم دادن نیز دارد. برای آموزش مدل، تعیین پارامترها و آرایش شبکه لازم است از سیستم تحت بررسی داده جمع‌آوری شود. برای این منظور ورودی‌های سیستم مد نظر طی آزمایش یا شبیه‌سازی کامپیوتری به شکل مناسب تحریک شده و رفتار خروجی ثبت می‌شود. سپس از این مجموعه ورودی و خروجی برای آموزش، تست و ارزیابی مدل به‌دست آمده استفاده می‌شود. به همین دلیل نیاز است با استفاده از روابط حاکم بر فرآیند تحت نظر شبیه‌سازی لازم در محیط مناسب انجام شود.

### روابط حاکم بر فرآیند فراآوری

شمای ساده‌ای از فرآیند فراآوری و چاه در شکل ۲ نمایش داده شده است. پمپ ESP افزایش فشار لازم برای سیال تولیدی که از فصل مشترک چاه و مخزن به چاه وارد شده است را فراهم می‌کند. سیال با فشار بالاتر سپس با دبی مطلوب از طریق مسیر چاه و شیر سرچاهی به خطوط انتقال و چندراهه‌ها وارد شده و به سمت واحدهای بهره‌برداری جریان می‌یابد. در ادامه، به شکل خلاصه بخش‌های مختلف مجموعه فراآوری را بررسی کرده و روابط حاکم در هر بخش را شرح می‌دهیم. در این تحقیق از روابط ارائه شده در مراجع [۸، ۹، ۱۶ و ۱۹] استفاده می‌شود.

زمان‌بر بوده و از نظر محاسباتی پرهزینه است. لذا در این تحقیق سعی می‌کنیم رفتار مجموعه فراآوری را با استفاده از مدل‌های ساده‌تر تخمین بزنیم. گرچه استفاده از مدل‌های تخمینی دقت را کاهش می‌دهند اما حلقه بازخورد کنترل‌کننده کاهش دقت حاصل شده را جبران می‌کند. در فرآیندهای دینامیک مقدار خروجی مطابق رابطه ۱۰ در هر لحظه  $t$  وابسته به مقادیر فعلی و گذشته ورودی و مقادیر گذشته خروجی است.

$$y(t) = f(\phi(t, \theta), \theta) \quad (10)$$

که در آن  $y(t)$  مقدار خروجی مدل،  $\phi(t, \theta)$  بردار رگرسورها،  $\theta$  مجموعه پارامترهای مدل و  $f$  یک تابع غیرخطی است. انتخاب رگرسورها معمولاً براساس دانش از فرآیند تحت بررسی و سعی و خطا انجام می‌شود. یکی از انواع رگرسورهای محبوب در تخمین فرآیندهای غیرخطی استفاده از مدل NARX<sup>۱</sup> می‌باشد که مطابق رابطه ۱۱ رگرسورهای آن مبتنی بر مجموعه‌ای از ورودی و خروجی‌های گذشته فرآیند است [۱۴ و ۱۵].

$$\phi(t) = \quad (11)$$

$$[y(t-1), \dots, y(t-n_a), u(t-n_a), \dots, u(t-n_k-n_b)]^T$$

پس از انتخاب رگرسورهای مدل (یا به عبارت دیگر مقادیر) لازم است تابع غیرخطی مدل نیز تعیین شود. تابع  $f$  باید به گونه‌ای انتخاب شود که پس از مشخص کردن مجموعه پارامترهای  $\theta$  نگاشتی صحیح میان رگرسورهای مدل و خروجی مدل پیاده‌سازی کند. انتخاب‌های زیادی برای ساختار تابع مدل وجود دارد. در این تحقیق از شبکه‌های عصبی برای این منظور استفاده می‌شود.

شبکه‌های عصبی با الگویی از شبکه‌های عصبی زیستی، خانواده‌ای از توابع غیرخطی متشکل از واحدهای پردازشی ساده به نام نورون هستند که در یک شبکه به کمک اتصالاتی با وزن مشخص به یک دیگر متصل شده‌اند. نوع، تعداد و نحوه اتصال نورون‌ها در شبکه و وزن اتصالات بین آن‌ها

همچنین، از قانون پايستگي تكانه خواهيم داشت:

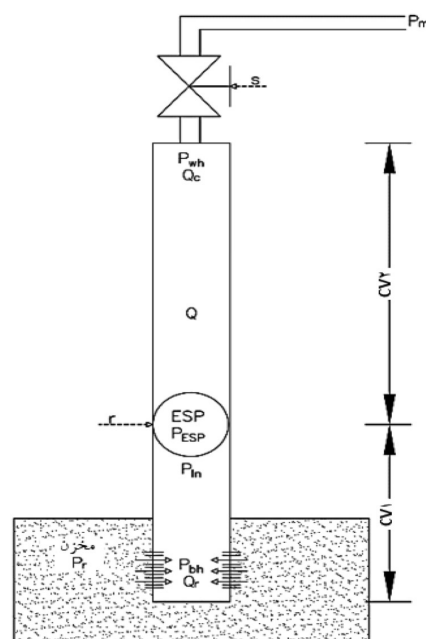
که در آن  $F$  تلفات فشار ناشی از اصطکاک سیال و  $h$  ارتفاع سیال در چاه است. حال با تقسیم مسیر تولید از کف چاه تا سرچاه به حجم‌های کنترلی مختلف می‌توان روابط ۱۳ و ۱۴ را با در نظر گرفتن فرض‌های ساده‌سازی (روابط ۱۷-۱۵) به‌صورت ساده شده برای هر حجم کنترلی در نظر گرفت. همچنین با توجه به کاربرد مدل برای طراحی کنترل‌کننده، در نظر گرفتن تنها دو حجم کنترلی  $CV_1$  از کف چاه تا ورودی پمپ و  $CV_2$  از خروجی پمپ تا قبل از شیر سرچاهی کفایت می‌کند [۶].

**فرض اول:** انباشت سیال در هر حجم کنترلی صفر است.

**فرض دوم:** تغییرات فشار در هر نقطه از هر حجم کنترلی برابر تغییرات فشار متوسط حجم کنترلی می باشد

**فرض سوم:** تغییرات چگالی ( $\rho$ ) سیال ناشی از تغییرات دما و فشار سیال است، اما با توجه به کندتر بودن دینامیک‌های فشار می‌توان از اثر تغییرات دما صرف نظر کرد. در نتیجه خواهیم داشت:

که در آن  $\beta$  مدولوس حجم سیال<sup>۱</sup> بوده و  $\rho_0$  چگالی سیال در شرایط استاندارد است.



شکل ۲ شمای فرازآوری با یمپ ESP

توانایی مخزن در تولید به کمک روابط عملکرد جریانی یا IPR که توصیف کننده ارتباط میان نرخ تولید از مخزن ( $Q_r$ ) و گرادیان فشار بین مخزن و چاه است، مطابق رابطه ۱۲ محاسبه می شود.

روابط IPR تحلیلی و تجربی متعددی براساس رژیم جریانی، فشار مخزن، چاه و فشار نقطه حباب سیال مخزن و شرایط سیال تولیدی معرفی و توسعه داده شده‌اند. در این تحقیق با در نظر گرفتن این شرایط در هر مورد از روابط Vogel, Productivity Index یا دیگر روابط معرفی شده در مرجع [۲۰] استفاده می‌شود.

برای مدل‌سازی دینامیک جریان سیال تولیدی در مسیر تولید می‌توان حرکت سیال را به صورت جریان تک بعدی در لوله عمودی در نظر گرفت [۱۷] و [۲۱]. در این صورت مطابق قانون پایستگی جرم خواهیم داشت،

که در آن  $P$  فشار سیال در زمان  $t$  در نقطه  $Z$

$$\frac{Q_2}{Q_1} = \frac{r_2}{r_1} \quad (23)$$

$$\frac{P_{ESP-2}}{P_{ESP-1}} = \left( \frac{r_2}{r_1} \right)^2$$

$$\frac{BHP_2}{BHP_1} = \left( \frac{r_2}{r_1} \right)^3$$

درخصوص اثر گرانروی بر عملکرد پمپ، برای نفت سبک یا سیالات با گرانروی نزدیک به سیال استاندارد نیازی به اصلاح مقادیر نیست. اما در صورتی که سیال پمپ شده گرانروی بسیار بالاتری از آب داشته باشد نیاز است که منحنی‌های عملکرد پمپ مطابق روابط زیر اصلاح شوند:

$$Q_{vis} = C_Q Q_w \quad (24)$$

$$H_{vis} = C_H H_w$$

$$\eta_{vis} = C_\eta \eta_w$$

ضرایب  $C_Q$ ،  $C_H$  و  $C_\eta$  برای سیالات با گرانروی مختلف توسط مؤسسه هیدرولیک در نمودارها و جداول مختلف گزارش شده است. در این تحقیق از روش تورزو و هم‌کارانش استفاده می‌شود. آن‌ها با برآزش منحنی مناسب برروی نمودارهای ارائه شده توسط مؤسسه هیدرولیک، روشی به مراتب سریع‌تر برای محاسبه ضرایب اصلاحی براساس تابعی از نرخ تولید تصحیح شده  $Q^*$  که خود تابعی از دبی  $Q_{BEP}$  و هد تولید شده  $H_{BEP}$  در نقطه بهینه عملکرد پمپ<sup>۱</sup> است، به‌دست آوردند. این روش به تفصیل در مرجع [۲۲] شرح داده شده است.

#### شیر سرچاهی

برای محاسبه دبی سیال عبوری از شیر سرچاهی ( $Q_C$ ) از رابطه ۲۵ حاصل شده از ساده‌سازی روابط برنولی که در استاندارد ISA 75.01 به‌عنوان رابطه استاندارد شیرهای کنترلی معرفی شده است استفاده می‌شود [۲۳].

$$Q_C = sC_v \sqrt{\frac{P_m - P_{wh}}{\rho}} \quad (25)$$

که در آن  $P_m$  فشار پایین دست چاه و  $C_v$  ضریب شیر است که توسط سازنده شیر اعلام می‌شود.

حال با در نظر گرفتن فرض‌های بالا و انتگرال‌گیری از روابط ۱۳ و ۱۴ در طول حجم کنترلی می‌توان روابط دیفرانسیلی زیر را به‌دست آورد:

$$\frac{V_1}{\beta_1} \frac{dP_{bh}}{dt} = Q_r - Q \quad (18)$$

$$\frac{V_2}{\beta_2} \frac{dP_{wh}}{dt} = Q - Q_c \quad (19)$$

$$M \frac{dQ}{dt} = (P_{bh} - P_{wh} - F - \rho gh + \Delta P_{ESP}) \quad (20)$$

که در آن  $V_1$  و  $V_2$  حجم هر بخش از مسیر تولید،  $P_{bh}$  فشار کف چاه،  $P_{wh}$  فشار سرچاه،  $Q_r$  دبی تولید از مخزن،  $Q_c$  دبی عبوری از شیر سرچاهی و  $\Delta P_{ESP}$  افزایش فشار تولید شده توسط پمپ است. برای محاسبه افت فشار ناشی از اصطکاک از رابطه ۲۱ که در مرجع [۱] معرفی شده است، استفاده می‌شود.

برای محاسبه افت فشار ناشی از اصطکاک از رابطه ۲۱ که در مرجع [۱] معرفی شده است، استفاده می‌شود.

$$F = \alpha \left( \frac{\mu}{\rho D Q} \right)^{0.25} \frac{l \rho Q^2}{D A^2} \quad (21)$$

که در آن  $\mu$  گرانروی سیال،  $l$  طول مسیر تولید و  $D$  قطر سطح مقطع مسیر تولید است.

برای محاسبه پارامتر اینرسی سیال ( ) نیز می‌توان از رابطه زیر استفاده کرد:

$$M = \int_l \frac{\rho(z)}{A(z)} dz \quad (22)$$

#### پمپ

پارامترهای عملکردی پمپ مانند هد تولید شده، توان مصرفی و بازدهی پمپ در هر دبی توسط سازندگان پمپ ESP در نمودارهایی با عنوان نمودار عملکردی پمپ ارائه می‌شود. اما این نمودارها معمولاً برای سیال استاندارد (آب) در شرایط دما و فشار استاندارد (مطابق با API RP 11S2) تولید شده‌اند. برای محاسبه عملکرد پمپ در سرعت‌های چرخش متفاوت و سیال با گرانروی متفاوت از سیال استاندارد نیاز است که مقادیر گزارش شده اصلاح شوند. مطابق قانون Affinity برای پمپ با سایز پره ثابت در سرعت‌های مختلف روابط زیر برقرار است:

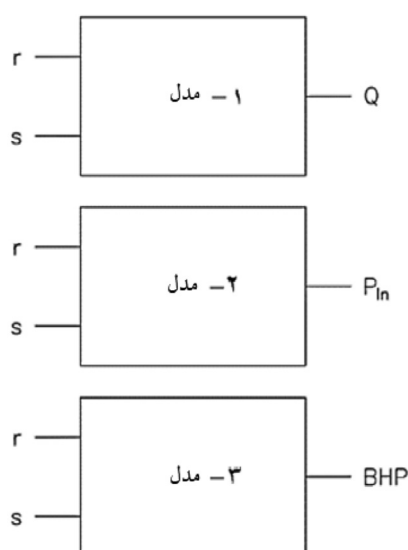


## شبیه‌سازی و نتایج

BHP و دبی تولیدی  $Q$  را در خروجی تخمین بزند. برای این منظور از سه مدل NARX چند ورودی و یک خروجی مانند شکل ۳ استفاده می‌کنیم. برای آموزش شبکه‌ای که توانایی مناسب در تخمین خروجی سیستم در شرایط مختلف را داشته باشد لازم است مجموعه داده ورودی و خروجی مناسب از سیستم تولید کنیم. برای این منظور با استفاده از مولد سیگنال شبه تصادفی<sup>۱</sup> ورودی‌های  $r$  و  $s$  به تعداد ۱۵۰۰ نمونه با دامنه و بازه زمانی تصادفی و تغییرات تصادفی تولید می‌کنیم. سیگنال‌های تحریک تولید شده و پاسخ سیستم در شکل ۴ نمایش داده شده‌اند. در مرحله بعد داده‌ها را به‌ترتیب به سه دسته ۱۰۰۰ تایی، ۳۰۰ تایی و ۲۰۰ تایی برای آموزش، تست و ارزیابی مدل (شبکه) تقسیم کرده و برای جلوگیری از اثرگذاری واحد کمیت‌ها بر روی شبکه، مقادیر را به بازه  $[-1, 1]$  تبدیل می‌کنیم. در این تحقیق از شبکه‌های عصبی موجک<sup>۲</sup> یا Wavenet استفاده شده است. شبکه‌های عصبی موجک از توابع موجک<sup>۳</sup> به‌عنوان توابع فعال‌سازی شبکه عصبی استفاده می‌کنند.

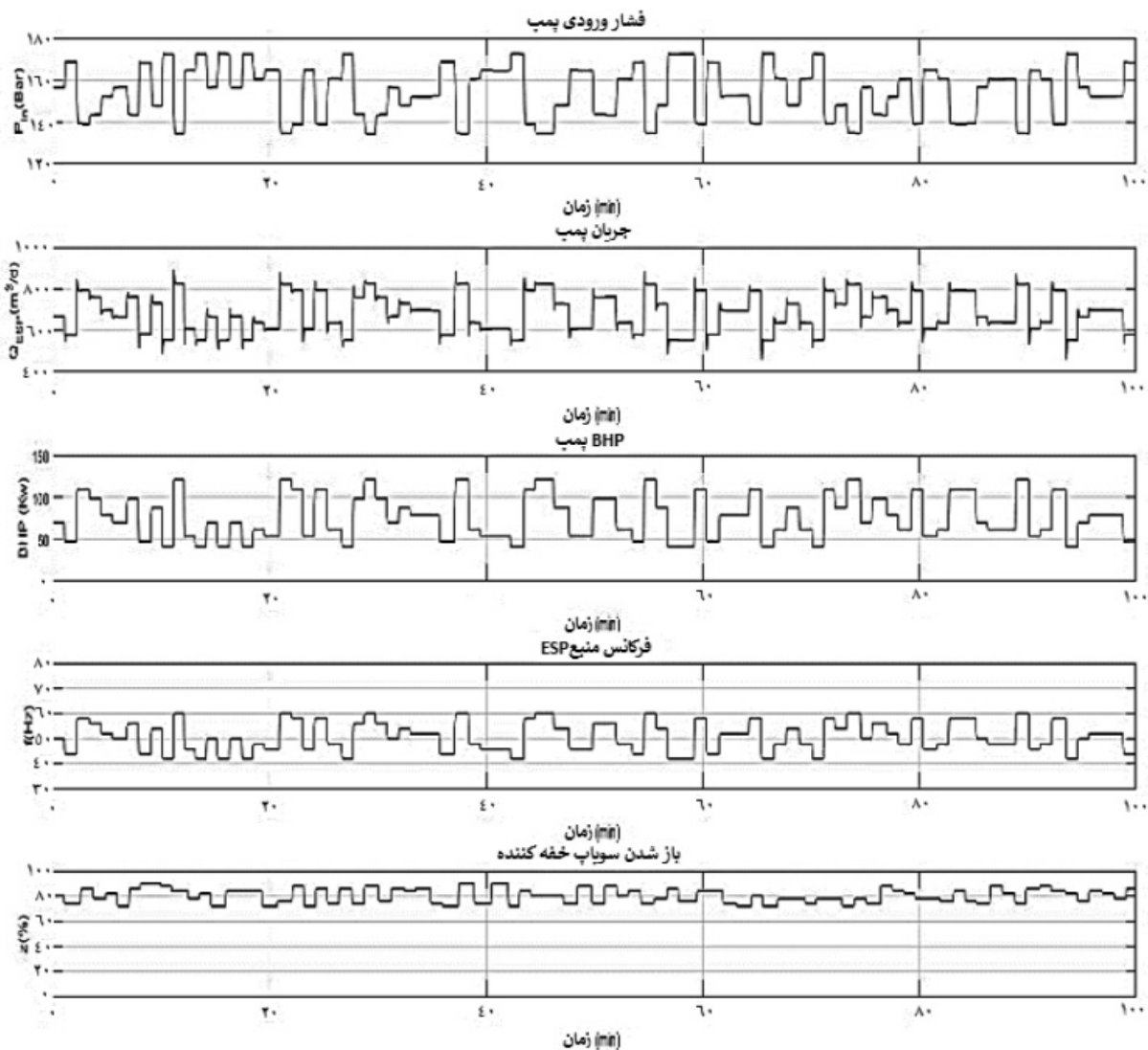
در این تحقیق به‌منظور بررسی عملکرد کنترل‌کننده توسعه داده شده بر روی یک مسئله واقعی، از کنترل‌کننده NMPC برای کنترل چاه شماره ۸۸ میدان اهواز آسماری استفاده شده است. شبیه‌سازی فرآیند و سیستم کنترل در محیط MATLAB پیاده‌سازی شده است. چاه شماره ۸۸ میدان اهواز آسماری با فشار متوسط مخزن bar ۲۵۹ و شاخص تولید  $7/14 \text{ m}^3/\text{day}$  به‌ازای هر بار به‌جهت افزایش نرخ تولید از دبی کنونی  $174/8$  به دبی دلخواه  $667/4 \text{ m}^3/\text{day}$  منتخب نصب پمپ ESP است. مطابق طراحی صورت گرفته در نرم‌افزار Pipesim، پمپ شرکت Centrilift با شماره P47 با بازده بیشینه ۷۰٪ و تأمین هد bar  $62/5$  در  $82$  مرحله با دامنه تولید  $445$  تا  $906 \text{ m}^3/\text{day}$  در عمق  $2290 \text{ m}$  دورن چاه در نظر گرفته شده است.

اولین مرحله، طراحی یک مدل غیرخطی از فرازآوری چاه شماره ۸۸ برای استفاده به‌عنوان مدل پیش‌بین در کنترل‌کننده NMPC است. با توجه به توضیحات ارائه شده، مدل مد نظر باید دارای دو ورودی  $r$  و  $s$  بوده و مقادیر فشار ورودی پمپ  $P_{in}$ ، توان مصرفی



شکل ۳ مدل‌های تخمین‌زده شده

1. Pseudo Random Signal Generator
2. Wavelet Neural Network
3. Wavelet Functions



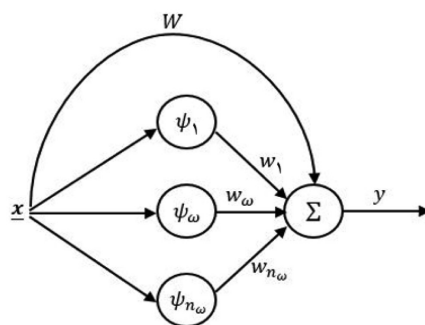
شکل ۴ سیگنال‌های ورودی و خروجی آزمایش

مجموعه از رگرسورها که بهترین عملکرد را بر روی داده‌های تست و ارزیابی داشتند انتخاب شدند. رگرسورهای انتخاب شده، تعداد نوروهای هر شبکه و عملکرد مدل بعد از پایان آموزش بر روی داده‌های ارزیابی در **جدول ۱** نمایش داده شده است. ملاک سنجش عملکرد هر مدل بر روی داده‌های ارزیابی از رابطه ۲۶ محاسبه شده است که در آن  $\hat{y}$  خروجی سیستم و  $y$  خروجی مدل می‌باشد در **جدول ۲** نمایش داده شده است.

$$fit(\%) = 100 \left( 1 - \frac{\|y - \hat{y}\|}{\|y - y_{mean}\|} \right) \quad (26)$$

محدود بودن دامنه پوشش توابع موجک، راحتی تعمیم توابع موجک به چند بعد و امکان استفاده از خاصیت چند تفکیکی<sup>۱</sup> توابع موجک برای آموزش شبکه عصبی از دلایل اصلی این انتخاب است [۲۴] و [۲۵]. ساختار شبکه در **شکل ۵** نشان داده شده است. همان‌طور که اشاره شد تعداد ۳ مدل شبکه عصبی با سه لایه شامل لایه ورودی، لایه پنهان (لایه شامل توابع موجک) و لایه خروجی به‌عنوان مدل برای پیش‌بینی رفتار سیستم در کنترل‌کننده با استفاده از داده‌های تولید شده تخمین زده شد. برای انتخاب رگرسورهای هر مدل پس از آموزش تعدادی مدل با مجموعه رگرسورهای مختلف بهترین

1. Multi-Resolution



شکل ۵ شبکه عصبی موجک

جدول ۱ نتیجه مدل‌های تخمین زده شده

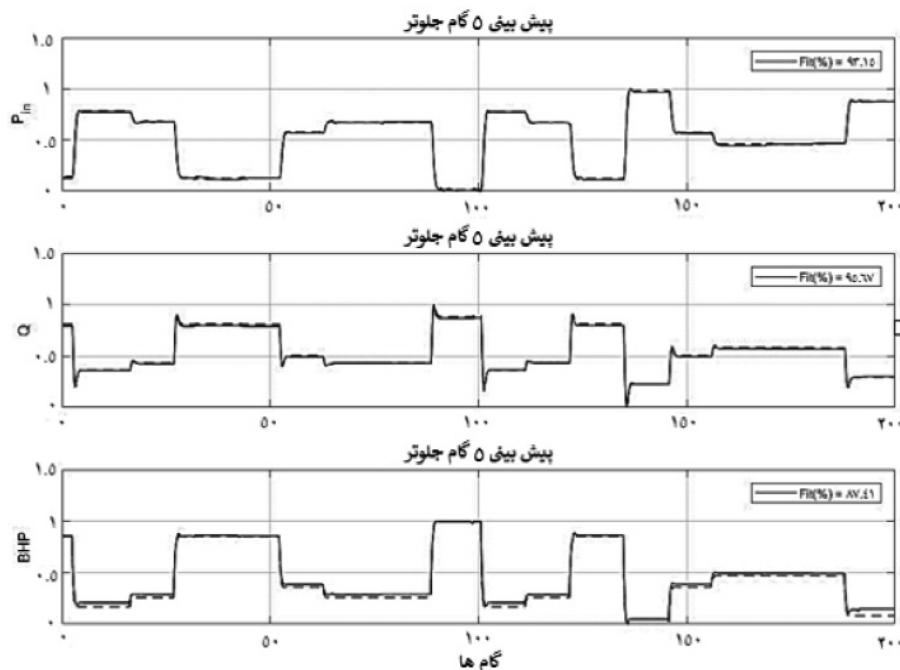
مدل	$Q$	$P_m$	$BHP$
رگر سورها $[n_a^1, n_a^2, n_b, n_k]$	$[4, 4, 2, 1]$	$[3, 2, 3, 1]$	$[4, 2, 3, 1]$
تعداد نورون‌ها	۱۲	۱۰	۱۸
درصد هم‌خوانی (Fit) (داده آموزش)	۹۷/۱۲	۹۶/۳۵	۹۲/۵۶
درصد هم‌خوانی (Fit) (داده ارزیابی)	۹۶/۷۴	۹۵/۱۲	۹۰/۳۲
درصد هم‌خوانی (Fit) (پیش‌بینی ۵ گام جلوتر)	۹۵/۶۷	۹۳/۱۵	۸۷/۴۱

جدول ۲ مقادیر پارامترهای شبیه‌سازی چاه ۸۸

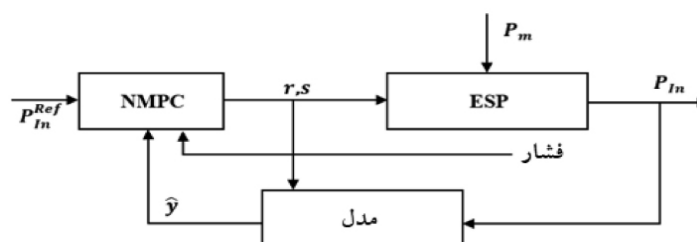
پارامتر	مقدار	واحد
g	ثابت گرانش	$m.s^{-2}$
$C_v$	ضریب شیر	-
A	سطح مقطع لوله تولیدی	$m^2$
D	قطر لوله تولیدی پایین دست پمپ	m
H	عمق عمودی کلی چاه	m
L1	طول کلی لوله تولیدی از بخش تولید تا پمپ	m
L2	طول کلی لوله تولیدی از پمپ تا سرچاه	m
V1	حجم لوله تولیدی پایین دست پمپ	$m^3$
V2	حجم لوله تولیدی بالا دست پمپ	$m^3$
$\rho$	چگالی سیال تولیدی	$Kg.m^{-3}$
$P_r$	فشار متوسط مخزن	bar
PI	شاخص تولید چاه	$m^3.d^{-1}.bar^{-1}$
$\mu$	ویسکوزیته سیال تولیدی	cP
$P_m$	فشار متوسط چندراهه	bar

کنترلی مطابق موارد مطرح شده در بخش‌های قبلی نگهداری فشار ورودی پمپ مطابق یک رفتار مرجع و جلوگیری از اثرگذاری اغتشاشات بر روی عملکرد پمپ است به گونه‌ای که محدودیت‌های عملیاتی و ایمنی مجموعه فراآوری رعایت شوند. جهت بررسی بهتر عملکرد سیستم کنترل، از یک مولد سیگنال شبه تصادفی برای تولید سیگنال مرجع و اغتشاشات فشار پایین دست چاه استفاده شده است تا دامنه، بازه زمانی و زمان تغییرات به صورت تصادفی تعیین شوند. دیاگرام بلوکی سیستم کنترل در شکل ۷ نمایش داده شد است. در این مرحله از طراحی کنترل کننده لازم است پارامترهای تنظیمی کنترل کننده NMPC شامل مقادیر افق پیش‌بینی، افق کنترل و ضرایب جریمه مشخص شوند.

جهت ارزیابی مدل، عملکرد مدل‌های تخمین زده شده بر روی داده‌های ارزیابی و برای پیش‌بینی ۵ گام جلوتر سنجیده شد که نتایج حاصل در شکل ۶ نشان‌دهنده عملکرد بسیار عالی مدل تخمین زده شده برای پیش‌بینی رفتار سیستم در کنترل کننده می‌باشد. پس از طراحی مدل غیرخطی از فرآیند فراآوری، مرحله بعدی استفاده از مدل تخمین زده شده در کنترل کننده و ارزیابی عملکرد کنترل کننده در کنترل مجموعه فراآوری است. در سناریو در نظر گرفته شده، عملکرد سیستم کنترل طراحی شده برای پمپ نصب شده در چاه شماره ۸۸ تحت تغییرات متعدد مقدار مرجع فشار ورودی پمپ (پیروی از سیگنال مرجع) و تغییرات فشار پایین دست چاه (جبران اغتشاش) بررسی و تست می‌شود. هدف



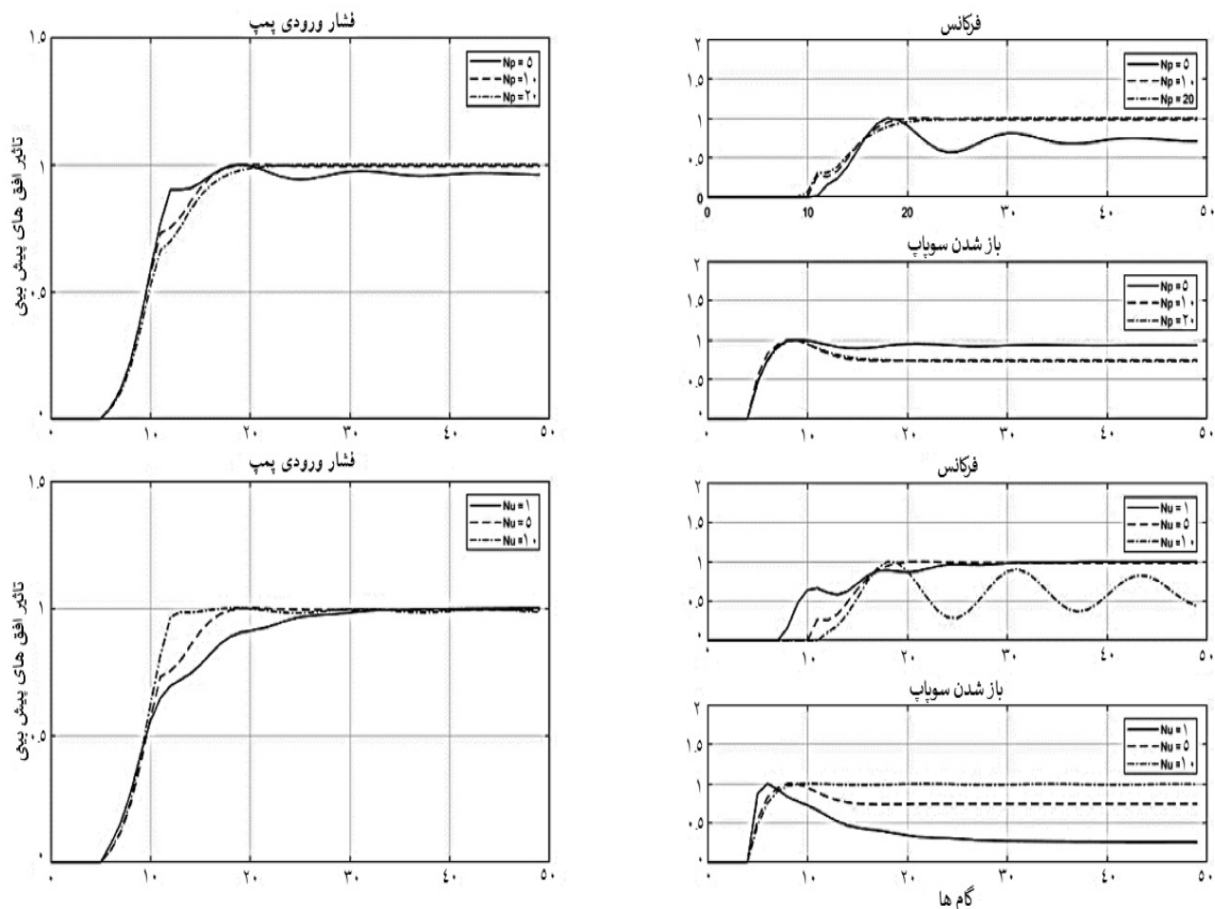
شکل ۶ عملکرد مدل‌های تخمین زده شده برای پیش‌بینی ۵ گام جلوتر



شکل ۷ دیاگرام بلوکی سیستم کنترل پیشنهادی

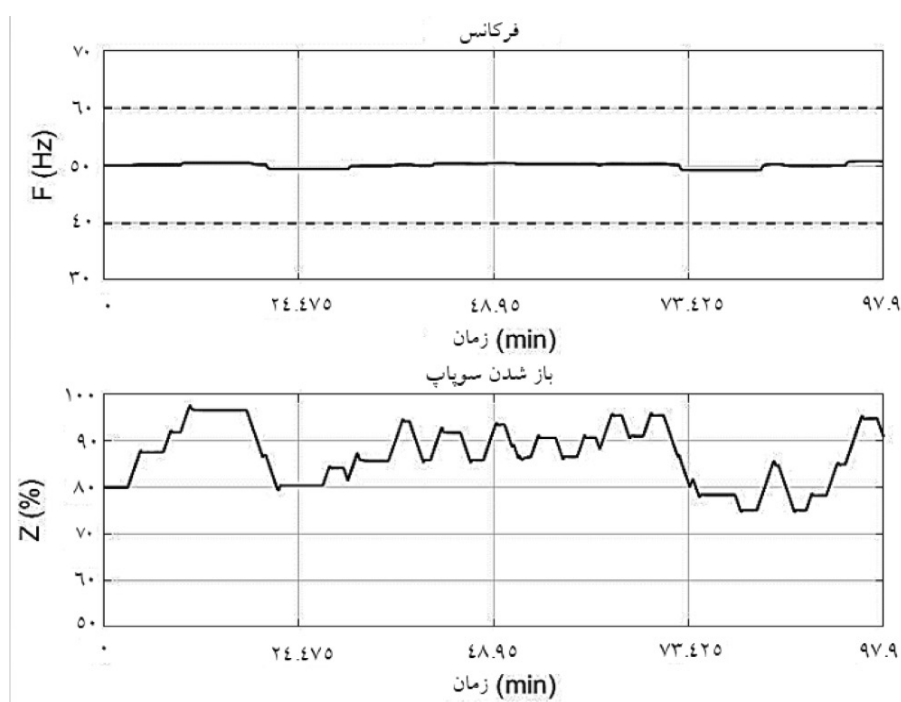
گرچه سرعت پاسخ گویی سیستم افزایش می یابد اما عمل کنترلی نوسانی و ناپایدار شده که مطلوب نیست. با توضیحات بالا و انجام سعی و خطا در طراحی کنترل کننده افق پیش بین ۱۰ و افق کنترل با طول ۳ در نظر گرفته شد. همچنین به منظور جلوگیری از اثرگذاری واحد کمیت ها بر روی تصمیم گیری کنترل کننده و مسئله بهینه سازی تمامی ورودی و خروجی های کنترل کننده به بازه یکسان  $[-1,1]$  تبدیل شدند. از آنجا که پیروی از فشار ورودی مرجع از اهمیت بیشتری نسبت به کاهش مصرف انرژی برخوردار است، ضریب جریمه انحراف از مقدار مرجع ( $\lambda_1$ ) ۱۰ برابر ضریب جریمه مصرف انرژی ( $\lambda_2$ ) انتخاب شده است. نتیجه پیاده سازی کنترل کننده بر روی مجموعه فرازآوری چاه شماره ۸۸ با مشخصات مطرح شده و سناریو تعریف شده در شکل های ۹-۱۲ نمایش داده شده است.

به طور معمول، مقدار افق پیش بینی را به گونه ای تعیین می کنند که کل بازه پاسخ گذرا سیستم را شامل شود درحالی که کران پایین افق پیش بینی باید از زمان تاخیر پاسخ سیستم بیشتر باشد. افق کنترل نیز باید به گونه ای انتخاب شود که زمان کافی برای اعمال سیگنال کنترلی جهت رساندن مقادیر کنترل شده به مقدار مرجع را بدون نیاز به عمل کنترلی شدید به سیستم ارائه دهد. مقادیر بزرگتر افق کنترل عملکرد کنترل کننده بهبود می بخشد اما از طرف دیگر بار محاسباتی نیز به شدت افزایش پیدا می کند. تأثیر انتخاب مقادیر مختلف برای افق کنترل و افق پیش بینی در عملکرد کنترل کننده در شکل ۸ نمایش داده شده است. همان طور که مشاهده می شود انتخاب مقادیر بزرگتر افق پیش بینی سبب افزایش پایداری سیستم، کاهش خطای حالت ماندگار می شود. از طرف دیگر با افزایش افق کنترل

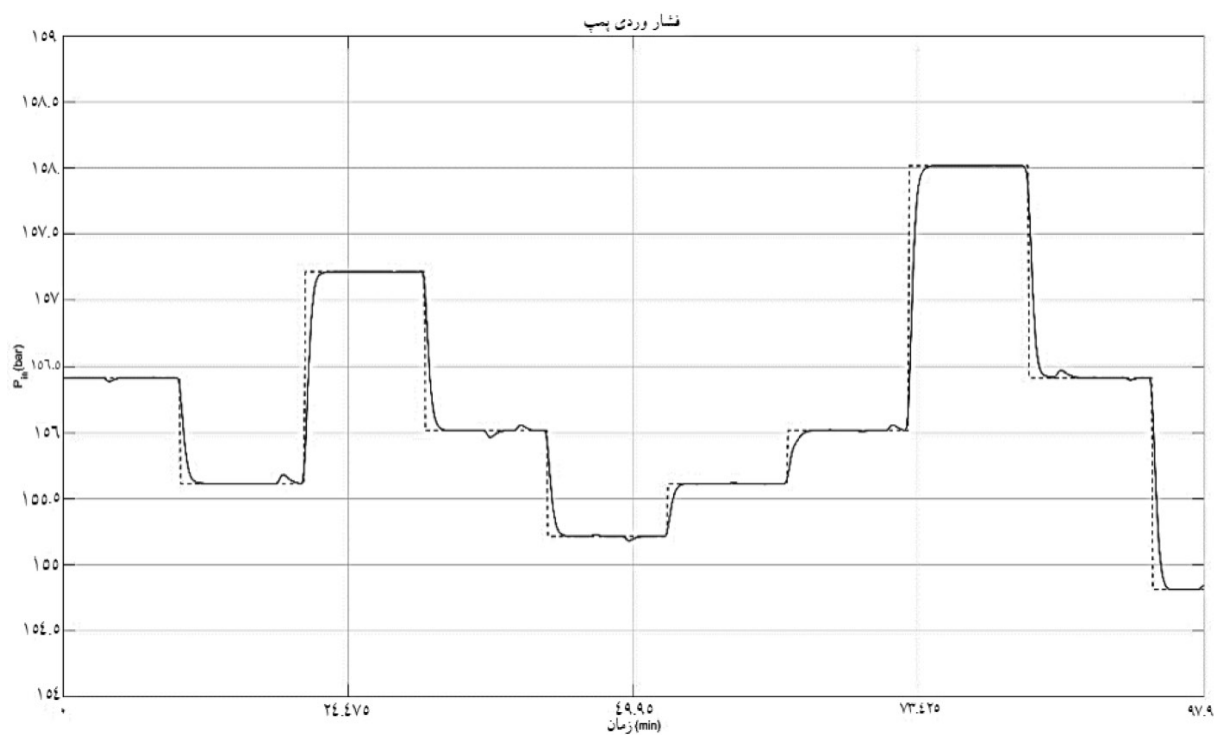


شکل ۸ اثر افق پیش بینی و افق کنترل بر عملکرد سیستم کنترل

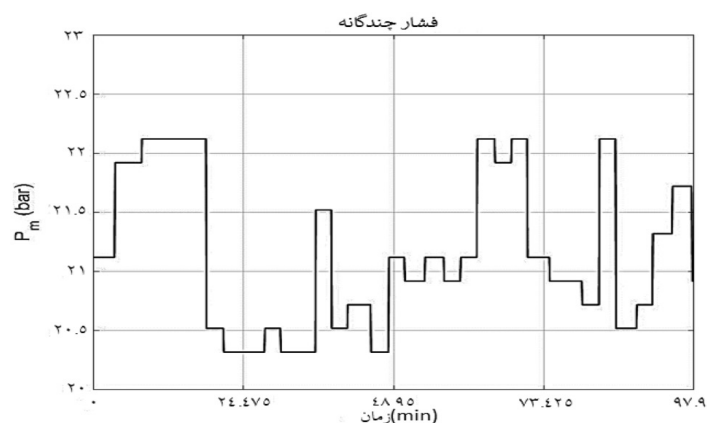




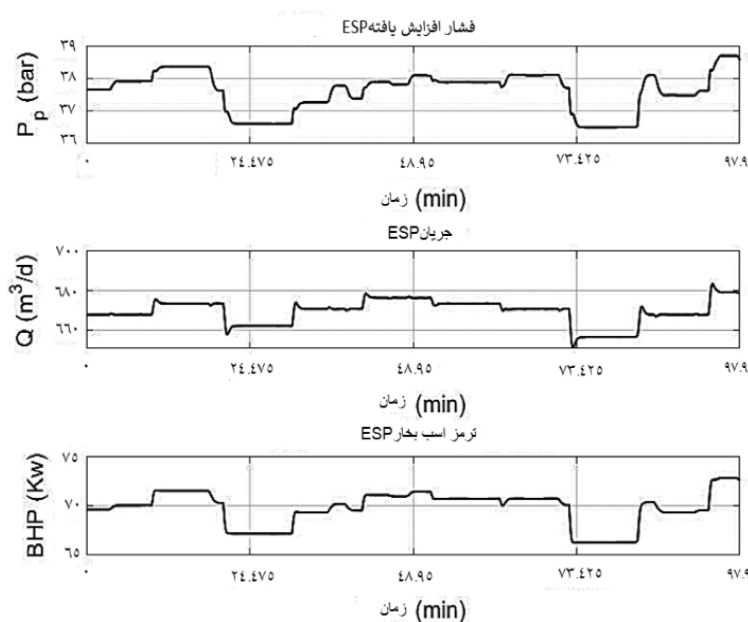
شکل ۹ خروجی کنترل کننده NMPC



شکل ۱۰ رفتار سیستم تحت کنترل NMPC



شکل ۱۱ تغییرات فشار سرچاهی



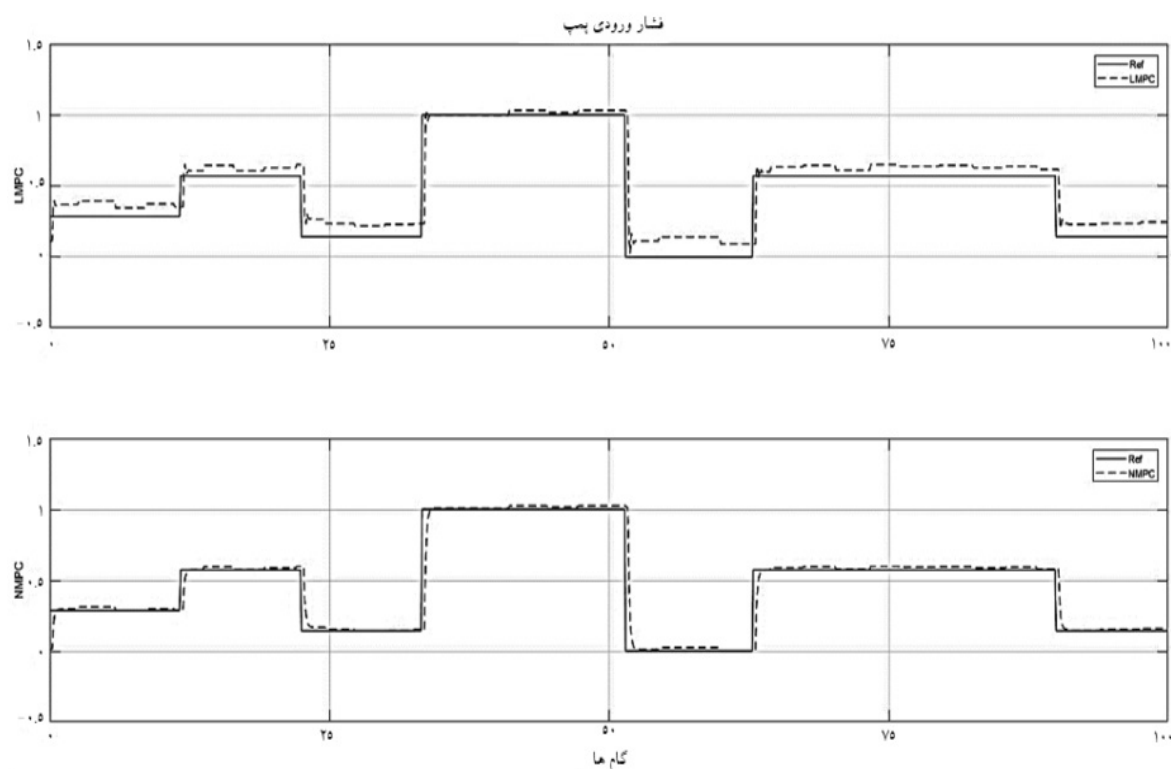
شکل ۱۲ هد تولیدی، دبی خروجی و توان مصرفی پمپ

داشته شده است. از طرف دیگر، هد تولیدی پمپ در بازه مجاز طراحی باقی مانده است. همچنین به علت استفاده از مدل NARX مبتنی بر شبکه عصبی بار محاسباتی کنترل کننده کاهش یافته است. در ادامه به منظور مقایسه، عملکرد سیستم کنترل NMPC توسعه داده شده با سیستم کنترل پیشبین خطی (LMPC) مقایسه شد. در طراحی کنترل کننده خطی از مدل خطی ARX با رگرسیون تعیین شده توسط برنامه شناسایی سیستم نرم افزار MATLAB استفاده شد. انتخاب رگرسیونها براساس انتخاب بهترین مدل با کمترین میزان خطای پیش بینی

همان طور که مشخص است کنترل کننده تغییرات مرجع را به خوبی دنبال می کند. به علت استفاده از مدل و کنترل کننده غیرخطی، حتی با وجود تغییرات با دامنه بزرگ در سیگنال مرجع، سیستم کنترل قادر به پیروی از رفتار مطلوب بوده و به سرعت اغتشاشات را جبران کرده است. این درحالی است که کنترل کننده NMPC هیچ یک از محدودیت های تعریف شده را نقض نکرده و پمپ در محدوده عملیاتی مناسب خود باقی مانده است. همچنین، تغییرات سرعت چرخش پمپ بسیار نرم بوده و شیر سرچاهی نیز تا جای ممکن باز نگه

سیستم خطای ثابتی نسبت به مدار مرجع وجود دارد. همچنین سیستم کنترل نمی‌تواند به‌طور کامل اغتشاشات ورودی به فرآیند را جبران‌سازی کند. این درحالی است که سیستم کنترل NMPC به‌علت استفاده از مدل غیرخطی به‌خوبی رفتار مطلوب را دنبال کرده و اثرات اغتشاشات ورودی به سیستم را سریعاً جبران‌سازی می‌کند.

صورت گرفته است. تنظیم پارامترهای کنترل‌کننده LMPC نیز به‌کمک برنامه MPC Designer نرم‌افزار MATLAB صورت گرفت. عملکرد کنترل‌کننده LMPC طراحی شده در شکل ۱۳ نمایش داده شده است. همان‌طور که انتظار می‌رفت به‌علت استفاده از تخمین خطی و تفاوت مدل تخمین زده شده با فرآیند تحت بررسی (Mismatch) در خروجی



شکل ۱۳ مقایسه عملکرد کنترل‌کننده LMPC و NMPC

مرجع و جبران اغتشاشات، عملکرد کنترل‌کننده بر روی مجموعه فرازآوری چاه شماره ۸۸ میدان اهواز آسماری شبیه‌سازی شد. نتایج به‌دست آمده از شبیه‌سازی نشان می‌دهند که کنترل‌کننده طراحی شده به‌خوبی تغییرات سیگنال مرجع را دنبال می‌کند، اغتشاشات ورودی به مجموعه فرازآوری به‌سرعت جبران شده و در عین حال محدودیت‌های ایمنی و عملیاتی مجموعه فرازآوری با پمپ ESP نقض نشده‌اند.

### نتیجه‌گیری

در این مقاله سیستم کنترل پیش‌بین غیرخطی مبتنی بر مدل برای مجموعه فرازآوری با پمپ الکتریکی درون‌چاهی طراحی و توسعه داده شد. به‌منظور کاهش بار محاسباتی کنترل‌کننده، مدل دینامیک غیرخطی مبتنی بر رگرسیون‌های مدل NARX و شبکه عصبی Wavenet به‌عنوان مدل تخمین زنده در ساختار NMPC طراحی شد. جهت بررسی عملکرد کنترل‌کننده در پیروی از رفتار

## علائم و نشانه‌ها

 $Q_e$ : دبی عبوری از شیر سرچاهی ( $m^3.s^{-1}$ ) $Q_r$ : دبی تولیدی مخزن ( $m^3.s^{-1}$ ) $\nu$ : سرعت چرخش پمپ (Hz) $S$ : بازشدگی شیر سرچاهی (%) $Z$ : عمق (m) $A$ : سطح مقطع مسیر تولید ( $m^2$ ) $BHP$ : توان مصرفی پمپ (kW) $C_Q, C_H, C_\eta$ : ضرایب تصحیح گرانروی $F$ : تلفات فشار ناشی از اصطکاک (bar) $J$ : شاخص تولید ( $m^3.s^{-1}.bar^{-1}$ ) $M$ : پارامتر اینرسی سیال $P_{bh}$ : فشار کف چاه (bar) $P_{in}$ : فشار ورودی پمپ (bar) $P_r$ : فشار متوسط مخزن (bar) $P_m$ : فشار پایین دست چاه (bar) $P_{wh}$ : فشار سرچاه (bar) $\Delta P_{ESP}$ : هد تولیدی پمپ (bar)

## حروف یونانی

 $\beta$ : مدولوس حجم سیال $\mu$ : گرانروی سیال (cP) $\lambda_1, \lambda_2$ : ضرایب جریمه $\rho$ : چگالی سیال ( $kg.m^{-3}$ ) $\nu$ : سرعت سیال ( $m.s^{-1}$ )

## مراجع

- [1]. Takacs G, (2017) Electrical submersible pumps manual: design, operations, and maintenance, Gulf Professional Publishing.
- [2]. Wilson B L, Liu J C (1985) Electrical submersible pump performance using variable speed drives, in SPE Production Operations Symposium, Society of Petroleum Engineers: Oklahoma City, Oklahoma, 7.
- [3]. Divine D L (1979) A Variable Speed Submersible Pumping System, in SPE Annual Technical Conference and Exhibition, Society of Petroleum Engineers: Las Vegas, Nevada, 12.
- [3]. Patterson M M, (2013) On the efficiency of electrical submersible pumps equipped with variable frequency drives: a field study, SPE Production and Facilities, 11: 61-64.
- [5]. Al-Jasmi A, Nasr H, Goel H, Moricca G, Carvajal G, Dhar J, Querales M, Villamizar M, Cullick A, Rodriguez J (2013) ESP Smart Flow integrates quality and control data for diagnostics and optimization in real time (Part of KwIDF Project). In SPE Middle East Intelligent Energy Conference and Exhibition, OnePetro, SPE Digital Energy Conference.
- [6]. Pavlov A, Krishnamoorthy D, Fjalestad K, Aske E, Fredriksen M (2014) Modelling and model predictive control of oil wells with Electric Submersible Pumps, IEEE Conference on Control Applications (CCA): 586-592.
- [7]. Sharma R, Glemmestad B (2013) Optimal control strategies with nonlinear optimization for an Electric Submersible Pump lifted oil field, Modeling, Identification and Control: A Norwegian Research Bulletin, 34: 55-67.
- [8]. Binder B, Kufoalor D, Pavlov A, and Johansen T, (2014), Embedded model predictive control for an electric submersible pump on a programmable logic controller, IEEE Conference on Control Applications, CCA, 5, 2: 579-585.
- [9]. Krishnamoorthy D, Bergheim E M, Pavlov A, Fredriksen M, and Fjalestad K, (2016) Modelling and robustness analysis of model predictive control for electrical submersible pump lifted heavy oil wells, IFAC-PapersOn-Line, 49, 7: 544-549.
- [10]. Delou P, Azevedo J, Krishnamoorthy D, de Souza Jr M, and Secchi A (2019) Model predictive control with adaptive strategy applied to an electric submersible pump in a subsea environment, IFAC-Papers on Line, 52, 3: 784-789.
- [11]. Ohrem S J, Holden C (2017) Modeling and nonlinear model predictive control of a subsea pump station, IFAC, 50, 2: 121-126.
- [12]. Allgöwer F, Findeisen R, Nagy Z K (2004) Nonlinear model predictive control: From theory to application, Institut of Chemical Engineers, 35, 3: 299-315.
- [13]. Grüne L, Pannek J (2011) Nonlinear Model Predictive Control, Nonlinear Model Predictive Control: Theory and Algorithms, 235.
- [14]. Schoukens J and Ljung L, (2019), Nonlinear system identification: A user-oriented road map, IEEE Control Systems Magazine, 39, 6: 28-99.

- [15]. Nelles O (2002) Nonlinear system identification, from classical approaches to neural networks, fuzzy models, and gaussian processes, Second edition, Oliver Nelles, Springer, 1-711.
- [16]. Binder B, Pavlov A, Johansen T (2015) Estimation of flow rate and viscosity in a well with an electric submersible pump using moving horizon estimation, IFAC, 48: 140-146.
- [17]. Kaasa G O, Stamnes Ø N, Aamo O M, Imsland L S (2012) Simplified hydraulics model used for intelligent estimation of downhole pressure for a managed-pressure-drilling control system, SPE Drilling and Completion, 27, 01: 127-138.
- [18]. Pavlov A, Alstad V (2010) Modelling, simulation and automatic control of ESP lifted wells, Statoil ASA, Norway, Technical Report, 4, 5: 35-48.
- [19]. Sardjono P, Saputra M N W (2016) Optimal bottomhole pressure control on oil well production using PID-linear hybrid control on electric submersible pump, 8th International Conference on Information Technology and Electrical Engineering (ICITEE), 1-6.
- [20]. Guo B (2011) Petroleum production engineering, a computer-assisted approach, 1st edition, Elsevier, 1-458.
- [21]. White F M (2011) Fluid Mechanics, 7th edition, Mc Graw Hill, 1-176.
- [22]. Turzo Z, Takacs G, Zsuga J (2000) Equations correct centrifugal pump curves for viscosity, Oil and Gas Journal, 98, 22: 57-57.
- [23]. Drive A (2007) Flow Equations for Sizing Control Valves, Standards and Recommended Practices for Instrumentation and Control, ANSI/ISA, 1-69.
- [24]. Zhang J, Walter G G, Miao Y, Lee W N W (1995) Wavelet neural networks for function learning, IEEE transactions on Signal Processing, 43, 6: 1485-1497.
- [25]. Bakshi B R, Stephanopoulos G (1993) Wave-net: a multiresolution, hierarchical neural network with localized learning, AIChE Journal, 39, 1: 57-81.



### راهنمای تهیه مقالات برای چاپ در مجله پژوهش نفت

مجله پژوهش نفت، مقالات علمی و پژوهشی در زمینه‌های مرتبط با صنایع نفت، گاز و پتروشیمی را برای چاپ می‌پذیرد. از پژوهشگران و کارشناسان گرامی که مایل به ارسال مقالات خود هستند، خواهشمندیم به موارد ذیل توجه فرمایند: مقاله را از طریق وب سایت مجله به آدرس [journals.ripi.ir](http://journals.ripi.ir) و یا وب سایت پژوهشگاه صنعت نفت به آدرس [www.ripi.ir](http://www.ripi.ir) با ثبت نام در سامانه الکترونیکی مجله ارسال نمایید.

مسئولیت کامل مطالب و منابع چاپ شده بر عهده نویسنده یا نویسندگان خواهد بود و نسخه نهایی مقاله پیش از چاپ به امضاء نویسنده یا نویسندگان می‌رسد. نویسنده یا نویسندگان متعهد خواهند شد که مقالات ارسالی در نشریه دیگری انتشار نیافته است. **(فرم تعهد با امضاء تمام نویسندگان ارسال گردد.)**

مقالات ارسالی عودت داده نمی‌شود.

آئین نگارش فارسی باید به طور کامل رعایت شود و از به کار بردن اصطلاحات خارجی که معادل دقیق و پذیرفته شده در زبان فارسی دارند، خودداری شود.

مقاله باید بر روی کاغذ سفید (A4) به صورت یک خط در میان (فاصله سطرها ۱/۲ سانتی متر) توسط نرم افزار Microsoft Word ویرایش ۲۰۰۷ یا ماقبل آن تایپ و حاشیه بالا و پایین ۲/۵ سانتی متر، حاشیه چپ و راست ۲/۵ سانتی متر، لبه بالا ۲/۵ سانتی متر و لبه پایین ۱/۲۷ سانتی متر تنظیم شود.

مقاله باید شامل بخش‌های زیر باشد:

۱. **عنوان:** باید تا حد امکان کوتاه و کاملاً گویای موضوع مقاله باشد.
- نام نویسنده یا نویسندگان باید پس از عنوان مقاله ذکر شود. نویسنده طرف مکاتبات باید با علامت \* در کنار نام خود مشخص گردد.
- عنوان و آدرس نویسنده یا نویسندگان و پست الکترونیکی نویسنده طرف مکاتبات مشخص شود.
۲. **چکیده:** باید بین ۱۵۰ تا ۳۰۰ کلمه و شامل هدف از تحقیق، روش کار، مهم‌ترین یافته‌ها و نتیجه‌گیری باشد.
۳. **واژه‌های کلیدی:** شامل ۳ الی ۶ واژه کلیدی که نکات اصلی در مقاله را معرفی می‌کند.
۴. **مقدمه:** مقدمه ضمن بیان هدف تحقیق، باید حاوی خلاصه‌ای از اهمیت موضوع، نتایج مطالعات و مشاهدات مرتبط با تحقیق مورد نظر که در گذشته انجام شده است، با ذکر منابع و مآخذهای لازم آن‌ها باشد.
۵. **روش کار:** در این بخش لازم است روش‌های آزمایشگاهی و مواد مصرفی و تجهیزات مورد استفاده به طور کامل معرفی شود. همچنین چگونگی و روش نمونه‌گیری با دقت بیان شود و آزمون‌های آماری مورد استفاده و مراحل استنتاج آماری به خوبی تشریح گردد.
۶. **نتایج و بحث:** در برگزیده نتایج حاصل از تحقیق به صورت متن، جدول، نمودار و تصویر و بحث در خصوص علل پدیده‌ها و مقایسه با یافته‌های مرتبط است.
۷. **نتیجه‌گیری:** در این بخش یافته‌های حاصل از تحقیق به صورت مختصر و شفاف ارائه می‌گردد.
۸. **تشکر و قدردانی:** در صورت لزوم از همکاری سازمان‌ها می‌شود.
۹. **علائم و نشانه‌ها:** فهرست علائم و نشانه‌های مورد استفاده در مقاله به ترتیب حروف الفبا به همراه واحد و شرح آن‌ها ارائه می‌شوند.
۱۰. **مراجع:** کلیه مراجع مورد استفاده به ترتیب ارجاع آن‌ها در متن، در این بخش ارائه می‌گردند.
۱۱. **عنوان، چکیده و واژه‌های کلیدی انگلیسی:** این بخش باید در صفحه‌ای جداگانه ارائه شود. تطبیق عنوان و چکیده فارسی با انگلیسی باید مورد توجه قرار گیرد. کلیه نکات مندرج در بند ۱، در ترجمه انگلیسی آن نیز رعایت می‌شود.

لطفاً در تنظیم مقالات، نکات زیر را رعایت فرمایید:

عنوان اصلی مقاله با قلم BZar شماره ۲۴ ضخیم تایپ شود.

عناوین اصلی داخل مقاله با قلم BNazanin شماره ۱۴ ضخیم و عناوین فرعی با قلم BNazanin شماره ۱۲ ضخیم تایپ شوند. هر تیترا از متن قبلی خود با یک خط فاصله جدا شود.

متن فارسی مقاله با قلم BNazanin شماره ۱۲/۵ نازک و واژه‌ها و متن انگلیسی با قلم Times New Roman شماره ۱۰ نازک تایپ شود. عنوان جداول و شکل‌ها با قلم BNazanin شماره ۱۱ ضخیم تایپ گردد. عنوان جداول در بالا و عنوان شکل‌ها در پایین آن‌ها نوشته می‌شود. محتوای فارسی جداول با قلم BNazanin شماره ۱۱ نازک و عبارات انگلیسی جداول با قلم Times New Roman شماره ۹ نازک تایپ شود.

کلیه اعداد باید به صورت فارسی تایپ شوند.  
 واحد تمامی اعداد باید در سیستم SI باشد.  
 کلیه فرمول‌ها باید به ترتیب شماره گذاری شده و با استفاده از نرم افزار MathType تهیه شوند.  
 کلیه جداول و شکل‌ها در انتهای مقاله ارائه گردد. هر جدول یا شکل در یک صفحه جداگانه ارائه شود. همچنین فایل اصلی مقاله شامل متن اصلی، چکیده فارسی و لاتین، جداول و تصاویر (بدون نام نویسندگان) نیز ارسال گردد.  
 کلیه جداول فارسی و راست چین باشد.  
 کلیه شکل‌ها باید به صورت سیاه و سفید و کاملاً واضح ارائه شوند.  
 از تکرار داده‌ها به صورت چندگانه (جدول و نمودار و ...) خودداری فرمایید.  
 اگر شکل یا جدولی از مرجع دیگر اخذ شده باشد، شماره مرجع در انتهای عنوان شکل یا جدول درج و مشخصات آن به منابع اضافه شود.  
 شکل‌های مقالات به صورت فایل اصلی (در همان نرم افزاری که توسط آن تهیه شده‌اند مانند Excel و غیره) ارسال شود.  
 از به کار بردن واژه‌های انگلیسی در متن مقاله خودداری شود. معادل انگلیسی کلمات فارسی و نام نویسنده (گان) که برای نخستین بار در مقاله به کار می‌رود، به صورت زیرنویس در صفحه مربوط درج گردد. زیرنویس‌ها در هر صفحه با گذاردن شماره فارسی در گوشه بالای آخرین حرف از کلمه، در متن مشخص شوند.  
 در بخش چکیده نباید ارجاعی به معادلات و یا مراجع مقاله داده شود.  
 کلیه مراجع ذکر شده در بخش مراجع باید در متن مقاله مورد ارجاع قرار گرفته باشند. شماره گذاری مراجع در متن در داخل کروشه صورت می‌گیرد.  
 -تعداد صفحات مقاله به صورت خام (بدون قالب بندی) حداکثر ۱۵ صفحه تهیه گردد.

ارائه مراجع بر اساس الگوی زیر صورت می‌گیرد:

-کتاب و گزارش فارسی و خارجی:

نام خانوادگی حرف اول نام نویسنده یا نویسندگان (سال انتشار) نام کتاب، ذکر نام فصل یا فصل‌های کتاب (در صورت مطالعه و استفاده از یک یا چند فصل کتاب)، نام کتاب، شماره ویرایش کتاب، ناشر، شماره صفحات.

**مثال:**

1. Barrow GM (1984) Physical chemistry, (4th ed.), McGraw-Hill Inc., 1-127.
2. Spellman FR (2010) Problems facing water and wastewater treatment, Spellman's standard handbook for wastewater operators, 1st ed., Crc Press, 9-32.
3. Spellman FR (2010) Problems facing water and wastewater treatment (Chapter 1), Spellman's standard handbook for wastewater operators, 1st ed., Crc Press, 9-32.

**-مقاله فارسی:**

نام خانوادگی حرف اول نام نویسنده یا نویسندگان (سال) عنوان مقاله، نام مجله به طور کامل، دوره مجله، شماره مجله: شماره صفحات.

**مثال‌ها:**

۴. صفایی م، قاسمی م، ر. و میرحبیبی ع. (۱۳۸۴) ساخت و بررسی ریز ساختاری پایه‌های کاتالیستی کلسیم آلومینات، نشریه شیمی و مهندسی شیمی ایران، ۲۴، ۲: صفحات ۱۸ - ۹.
۵. زینل‌زاده ا، رضایی م، ر. و کمالی م ر (۱۳۹۲) استفاده از مدلسازی یک بعدی حوضه در مطالعه سیستم نفتی: مثالی از سنگ‌های منشأ کژدمی و پابده در جنوب فروافتادگی دزفول، پژوهش‌های چینه‌نگاری و رسوب‌شناسی، ۲۹: ۱۱۹-۱۰۷.
- مقاله خارجی: نام خانوادگی حرف اول نام نویسنده یا نویسندگان (سال انتشار) عنوان مقاله، نام کامل مجله، دوره مجله، شماره مجله: شماره صفحات.

**مثال‌ها:**

6. Wang L, Sundén B (2003) Optimal design of plate heat exchangers with and without pressure drop specifications, Applied Thermal Engineering, 23: 295-311.
7. Qiu Z, Zou C (2020) Controlling factors on the formation and distribution of "sweet-spot areas" of marine gas shales in South China and a preliminary discussion on unconventional petroleum sedimentology, Journal of Asian Earth Sciences,

194, 1: 103989-103992.

8. Soltani B, Beiranvand B, Moussavi-Harami R, Honarmand J, Taati F (2020) Facies analysis and depositional setting of the upper pliocene akchagyl formation in southeastern caspian basin, NE Iran, Carbonates and Evaporites, 35, 8: 1-18.

9. Rögl F (1999) Mediterranean and Paratethys, Facts and hypothesis of an Oligocene to Miocene paleogeography (short review), Geologica Carpathica, 50, 4: 339-349.

10. Robert Alexandra MM, Letouzey J, Kavooosi MA, Sherkati S (2014) Structural evolution of the Kopeh Dagh fold-and-thrust belt (NE Iran) and interactions with the South Caspian Sea Basin and Amu Darya Basin, Marine and Petroleum Geology, Elsevier, 57: 68-87.

#### – مجموعه مقالات کنفرانس‌ها:

نام خانوادگی حرف اول نام نویسنده یا نویسندگان (سال برگزاری کنفرانس) عنوان مقاله، عنوان کنفرانس، محل برگزاری کنفرانس، شماره صفحات.

#### مثال:

۱۱. شکری قلعه س.، زرین پاشنه س. و سلطانیه م. (۱۳۷۹) مدل سازی و شبیه سازی راکتورهای چند فاز برای گوگردزدایی از سوخت دیزل، پنجمین کنگره ملی و چهارمین کنگره بین المللی مهندسی شیمی، دانشگاه شیراز، ایران.

12. Al-Thani J, Faisal F, Tony M (2005) Risk and uncertainty modeling in the oil and gas industry, Middle East Oil and Gas Show and Conference, Society of Petroleum Engineers (SPE), Bahrain.

#### – مقاله حاصل از کتب:

نام خانوادگی حرف اول نام نویسنده یا نویسندگان مقاله (سال انتشار)، عنوان مقاله، عنوان کتاب، ناشر، شماره صفحات.

13. Lee DH, Kim HI, Kim SS (2004) Surface modification of polymeric membranes by UV grafting, Advanced materials for membrane separations, American Chemical Society, 281-299.

#### – کتب:

نام خانوادگی حرف اول نام نویسنده یا نویسندگان مقاله (سال انتشار)، عنوان کتاب، ناشر، شماره صفحات.

۱۴. آقائباتی ع. (۱۳۸۳) انتشارات سازمان زمین شناسی و اکتشافات معدنی کشور، تهران، ۵۸۶-۱.

– پایان نامه: نام خانوادگی حرف اول نام نویسنده (سال) عنوان پایان نامه، نوع پایان نامه، دانشگاه، کشور، شماره صفحات (در صورت امکان).

#### مثال:

۱۵. ابراهیمی ه (۱۳۸۳) مدل سازی راکتورهای ریفرمینگ متان توسط بخار آب از نوع حرارت از بالا، پایان نامه کارشناسی ارشد، دانشگاه صنعتی سهند، ایران، ۷۱-۱.

۱۶. نبوی ج. (۱۳۸۳) گوگردزدایی بیولوژیکی زغال سنگ طبس، پایان نامه کارشناسی ارشد، دانشگاه صنعتی اصفهان، ایران، ۴۸-۱۳.  
– پایان نامه چاپ شده به زبان انگلیسی:

Author(s) (year) Title, Degree level, University/Institute, location, pp. .

17. Mack S. (2000) Desperate optimism, MA thesis, University of Calgary, Canada, 1-82.

– ثبت اختراع: نام خانوادگی حرف اول نام مخترع یا مخترعان (سال) عنوان اختراع، نوع و شماره ثبت اختراع.

#### مثال:

18. Baker F S (1998) Highly microporous carbon, U.S. Patent: 5710092.

منابع اینترنتی: نام خانوادگی حرف اول نام نویسنده یا نویسندگان (سال) عنوان، آدرس سایت –

#### مثال:

19. Arps J, Lanning B, Dearnaley G (2007) Maximizing a potentially significant energy source, <http://www.swri.org/3pubs/ttoday/spring06/energy.html>.

توجه: در بخش مراجع (References) به هیچ وجه ممکن لغت یا عبارت غیره یا بقیه نویسندگان یا "et al" به هیچ وجه ذکر نگردد.  
توجه: در بخش مراجع مقاله و بخش چکیده تفصیلی هر مقاله، خواهشمند است که به تعدادی از مقالات چاپ شده در مجله پژوهش نفت اشاره گردد.

فونت تمامی مراجع که به زبان انگلیسی نگارش می گردد می بایست Times New Roman 10 Regular باشد.

در بخش چکیده تفصیلی (Extended Abstract) فونت ها باید به صورت ذیل باشند:

بخش چکیده تفصیلی (Extended Abstract)	Font size and type
موضوع مقاله (Topic)	Times New Roman 14 Regular and Bold
نام و نام خانوادگی نویسندگان	Times New Roman 10 Regular and Bold
افیلیشن نویسندگان	Times New Roman 9 Regular and Italic
ایمیل نویسنده یا نویسندگان مسئول	Times New Roman 9 Regular
لغت Abstract	Times New Roman 10 Regular and Bold
متن Abstract	Times New Roman 10 Regular
لغت Keywords	Times New Roman 10 Italic and Bold
لغات Keywords	Times New Roman 10 Regular
لغت Introduction	Times New Roman 10 Regular and Bold
متن Introduction	Times New Roman 10 Regular
لغت Geological settings (در صورت نیاز)	Times New Roman 10 Regular and Bold
متن Geological settings (در صورت نیاز)	Times New Roman 10 Regular
لغت Materials and methods	Times New Roman 10 Regular and Bold
متن Materials and methods	Times New Roman 10 Regular
لغت Results and discussion	Times New Roman 10 Regular and Bold
متن Results and discussion	Times New Roman 10 Regular
لغت Conclusions	Times New Roman 10 Regular and Bold
متن Conclusions	Times New Roman 10 Regular
لغت Acknowledgment (در صورت نیاز)	Times New Roman 10 Regular and Bold
متن Acknowledgment (در صورت نیاز)	Times New Roman 10 Regular
لغت Nomenclatures (در صورت نیاز)	Times New Roman 10 Regular and Bold
متن Nomenclatures (در صورت نیاز)	Times New Roman 10 Regular
لغت References	Times New Roman 10 Regular and Bold
متن References	Times New Roman 10 Regular
لغت (Appendixes)	Times New Roman 10 Regular and Bold
متن (Appendixes)	Times New Roman 10 Regular
تعداد صفحات (با در نظر گرفتن شکلها و جداول)	Research Article: Maximum 5 pages including figures and tables Review Article: Maximum 9 pages including figures and tables Short communication Article (Research note): Maximum 3 pages including figures and tables
لغت Table	Times New Roman 9 Regular and Bold
متن بیانکننده جدول	Times New Roman 9 Regular
لغات، عبارات، واحدها درون هر سلول از جداول	Times New Roman 9 Regular
لغت Fig.	Times New Roman 9 Regular and Bold
متن بیان کننده شکل	Times New Roman 9 Regular
مراجع درون متن (in-text citations)	([Times New Roman 10 Regular (e.g. [1], [1,2-5], or [3,7

# Nonlinear Model Predictive Controller for Electrical Submersible Pump Lifted Wells

Farid Aldin Mirzaie Harsini and Mehdi Nazari Sarem\*

Faculty of Civil and Earth Resources Engineering, Islamic Azad University, Centre Tehran Branch, Iran

[mah.nazari\\_sarem@iauctb.ac.ir](mailto:mah.nazari_sarem@iauctb.ac.ir)

DOI: 10.22078/PR.2022.4734.3124

Received: February/07/2022

Accepted: May/01/2022

## Abstract

Artificial lifting utilizing electrical submersible pump is widely used to increase oil production from wells. A suitable control system is required in order to increase efficiency of ESP system and to avoid damage to pump and to increase safety of ESP production. Automatic control of ESP unit is not a trivial task due to the high number of parameters and variable involved. Many methods have been proposed for control of ESP lifted wells. Most methods rely on a linear model of ESP lifted well and controller designed based on this linear approximation. Linear model and controllers can fail if the process undergoes large changes in operating conditions or huge disturbances are introduced to process. Other methods solve dynamic equations governing the ESP lifted well operation. Although these methods are highly accurate; however, they are computationally expensive, and they cannot be implemented on conventional control systems. In this paper, a nonlinear dynamic model is developed for ESP lifted well. The model is then utilized inside a Nonlinear Model Predictive Control (NMPC) System. The developed model and controller performance is then tested and assessed under various scenarios. The developed controller performance shows proper reference tracking and disturbance rejection properties while the process constraint are completely satisfied.

**Keywords:** Artificial Lifting, Electrical Submersible Pump, Nonlinear Model Predictive Controller, Wavelet Network, Nonlinear Control.



# Optimization of Asphaltenes Separation from Vacuum Distillation Residue using Liquid-Liquid Extraction by Response-surface Method

Reza Asgari<sup>1</sup>, Vahab Ghalekhondabi<sup>2</sup>, Alireza Fazlali<sup>2,\*</sup>, Mahmoodreza Nikkholgh<sup>3</sup> and Abdoreza Moghadassi<sup>2</sup>

1. Process Engineer, Shazand Oil Refinery Co., Arak, Iran

2. Chemical Engineering Department, Faculty of Engineering, Arak University, Iran

3. Process Engineer, Exir Pooyan Co., Arak, Iran

a-fazlali@araku.ac.ir

DOI:10.22078/PR.2022.4733.3125

Received: February/08/2021

Accepted: June/12/2022

## Abstract

This investigation studied the separation of asphaltenes from the vacuum bottom, using industrial solvents such as normal pentane, hexane, and heptane. The central composite design (CCD) as a response surface methodology (RSM) method was applied to optimize the process. The weight percentage of asphaltene and the yield of de-asphalted oil (DAO) had been achieved at 0.447 and 48%, respectively, under optimum economic conditions (normal hexane solvent, solvent to feed ratio of 9.5 mL/g, and extraction temperature of 25 °C). The statistical study indicated that the response surface quadratic model for the mentioned parameters was significant and a perfect correlation between the statistical model and experimental data was found. Furthermore, according to an analysis of variance (ANOVA), the temperature of extraction and the quadratic interaction of the solvent to feed ratio parameter have shown a significant impact on the weight percentage of asphaltene. In general, the results suggest that the introduced approach is an efficient and economical technique to increase residual fluid catalytic cracking unit (RFCC) capacity and production of high-quality bitumen.

**Keywords:** Bitumen, De-asphalted Oil, Industrial Solvents, Optimization, Solvent de-asphalting, Vacuum Bottom.

# Porosity Modeling Using Simultaneously Seismic Attribute and Electrofacies Data in Sarvak Reservoir of an Iranian Oil Field

Vali Mehdipour<sup>1</sup>, Ahmad Reza Rabbani<sup>\*1</sup>, Ali Kadkhodaie<sup>2</sup>

1. Faculty of Petroleum Engineering, Amirkabir University of Technology, Tehran, Iran

2. Earth Sciences Department, Faculty of Natural Science, University of Tabriz, Iran

rabbani@aut.ac.ir

DOI:10.22078/PR.2022.4652.3089

Received: November/14/2021

Accepted: April/30/2022

## Abstract

In this study, 3D model of effective porosity in heterogeneous Sarvak reservoir in one oil field located in Dezful Embayment has been constructed. Therefore, geostatistics method has been applied for porosity propagation along with using trend maps of seismic attributes as well as seismic cube as secondary variable for Collocated co-kriging. Thus, the different seismic attributes including Attenuation, Envelope, RMS amplitude, Sweetness and Acoustic impedance attributes have been provided. The multiple attribute property has been used for preparing the related trend maps to be used in porosity modeling. Moreover, electrofacies analysis has been done via applying MRGC algorithm in order to control porosity distribution in 3D reservoir model. In this study, we tried to consider the trend maps, electrofacies, and seismic acoustic impedance cube along with applying geostatistics algorithms for 3D porosity propagation. Based on this study, the lower Sarvak has better reservoir quality than the Upper Sarvak due to developing of good reservoir facies. According to this study, the accuracy of the porosity model increases when it is used simultaneously seismic data and electrofacies, resulted in decreasing uncertainty of porosity distribution.

**Keywords:** Heterogeneous, Porosity, Electrofacies, Acoustic Impedance, 3D Model.

# Investigation of the Effects of pH Scale and Ultrasonic Waves on the Stability of Copper Oxide Nanoparticles in the Pool Boiling Process

Mohsen Khooshehchin<sup>1</sup>, Sohrab Fathi<sup>2</sup>, Farhad Salimi<sup>\*1</sup> and Akbar Mohammadidoust<sup>1\*</sup>

1. Department of Chemical Engineering, Kermanshah Branch, Islamic Azad University, Kermanshah, Iran

2. Department of Chemical Engineering, Faculty of Energy, Kermanshah University of Technology, Kermanshah, Iran

mohammadidoust@iauksh.ac.ir

f.salimi@iauksh.ac.ir

DOI:10.22078/PR.2022.4710.3114

Received: January/11/2022

Accepted: July/03/2022

## Abstract

In this study, the effects of pH and ultrasonic waves on the performance and stability of CuO have been studied. The CuO nanofluid (deionized water-based) was used to increase the boiling heat transfer coefficient. Boiling heat transfer coefficient of fluid increased by the addition of nanoparticles into the fluid, but due to the instability of nanoparticles by increasing temperature and time, nanoparticles were precipitated on the heat transfer surface. Therefore, it led to a reduction in the boiling heat transfer coefficient. Moreover, it is necessary to obtain the optimal concentration of nanoparticles in the fluid to determine the minimum amount of deposition. The use of methods to reduce the deposition of nanoparticles such as increasing the stability of nanoparticles and also an optimal concentration made an increase in heat transfer coefficient. To overcome this challenge, two conventional methods were employed including pH change (9.5, 10 and 10.5) and ultrasonic radiation (with 25%, 50%, and 75% of power). The results indicated that the maximum enhancements of boiling heat transfer coefficient were achieved at nanoparticles concentration of 0.125% under ultrasonic radiation with 50% power and the pH value of 10 as average of 37.48% and 22.68%, respectively.

**Keywords:** Nanoparticles, Boiling Heat Transfer Coefficient, Ultrasonic, pH, Sediment.

# Magnesium Chloride Removal by Nanofiltration Membranes Prepared from Cuprous Oxide Nanoparticles

Shakiba Ghohyei, Abdolreza Moghadassi\*, Samaneh Bandehali, Morteza Habibi and Maryam Eskandari

Department of Chemical Engineering, Faculty of Engineering, Arak University, Iran

a-moghadassi@araku.ac.ir

s-bandehali@phd.araku.ac.ir

DOI:10.22078/PR.2022.4700.3113

Received: January/10/2022

Accepted: June/13/2022

## Abstract

In this study,  $\text{Cu}_2\text{O}$  nanoparticles were first synthesized electrochemically, and the synthesized nanoparticles were used to modify nanofiltration membranes. Different concentrations of nanoparticles were included as an additive in PES as a membrane matrix for the preparation of PES/ $\text{Cu}_2\text{O}$  nanofiltration membranes. The prepared membranes were analyzed by Fourier transform infrared (FT-IR), scanning electron microscopy (SEM). FTIR analysis showed the formation of favorable bonds in the synthesized nanoparticles and prepared membranes. The separation performance of membranes was investigated with pure water flux and  $\text{MgCl}_2$  removal. The results showed the highest pure water flux of 36.78 L/m<sup>2</sup>h for M1 at 0.05 wt.%  $\text{Cu}_2\text{O}$  nanoparticles. In addition, the  $\text{MgCl}_2$  rejection increased to 72% at 2 wt.%  $\text{Cu}_2\text{O}$  nanoparticles for M5.

**Keywords:** Membrane, Nanofiltration, Magnesium Chloride Removal, Copper Oxide Nanoparticles, Modification Methods.

# Microfacies, Sedimentary Environment and Diagenetic Processes Analysis of Ilam Formation in Gachsaran Oil Field, Zagross Basin

Mehdi Ahmadi Nabi<sup>1</sup>, Davoud Jahani<sup>1</sup> and Bahman Soleimani<sup>\*2</sup>

1. Geology Department, Basic Sciences Faculty, North Tehran Branch, Islamic Azad University, Tehran, Iran

2. Department of Petroleum Geology and sedimentary Basin, Earth Sciences Faculty, Shahid Chamran University of Ahvaz, Iran

soleimani\_b@scu.ac.ir

DOI:10.22078/PR.2022.4456.3016

Received: June/21/2021

Accepted: July/03/2022

## Abstract

The study of sedimentary characteristics of carbonate formations as one of the main hydrocarbon reservoirs is important. In this research paper, we used thin section, and petrophysical logs data to analysis of facies, sedimentary environment and diagenetic variation of the Ilam Formation (Bangeštan group). Thin sections petrography revealed that the Ilam Formation which was deposited as a full series in western part of the Gachsaran oil field and characterized by a neritic facies indicating a shallow marine. The sedimentary facies of Ilam Formation are mainly limestone, and sometimes shaley limestone (in restricted part of the basin). The lack of Coniacian-Turonian sediments in wells drilled in eastern part of the field can be related to erosional phase after Cenomanian-Turonian and development of paleoheight parallel to Khark-Mish fault. The determined facies are deposited over a carbonate platform (shelf type) in three sedimentary environments: shoal, lagoon and semi restricted lagoon. The petrographic characteristics of detected facies of Ilam Formation revealed that they were experienced different diagenetic realms such as marine, meteoric, and burial and during uplift periods. These sediments then influenced by diagenetic processes such as micritization, compaction, cementation, neomorphism, solution, fracturing and replacement (dolomitization, hematization, and pyritization). The dominant porosity types are interconnected vugs, fracture and channel which are played a profound effects on the variation of reservoir quality. The measurements of petrophysical parameters present that the averages of porosity, water saturation and net to gross ratio are varied in the Ilam reservoir, but these parameters are generally 2.3%, 88% and 0.016, respectively. In view of low values of porosity, the role of fractures and diagenetic processes are important in the reservoir quality. The paleohigh presence in eastern section is not only affected on facies distribution, but it also has an important role in subsequent evolution. Therefore, the quality of the Ilam reservoir is a function of sedimentation, diagenesis, and tectonic activity; and therefore, it will be variable in different parts.

**Keywords:** Gachsaran Field, Ilam Formation, Well Log, Sedimentary Facies, Reservoir Quality.



# Facies Analysis, Diagenesis Processes and Sedimentary Environment of Shurijeh Formation in Khangiran Gas Field

**Zahra Mashayekhi<sup>1</sup>, Ali Kadkhodaie<sup>2\*</sup>, Ali Solgi<sup>1</sup>, Seyed Ahmad Babazadeh<sup>3</sup>, Seyed Mohsen Ale Ali<sup>1</sup>**

1. Department of Earth Sciences, Faculty of Convergent Sciences and Technologies, Islamic Azad University, Science and Research Branch, Tehran, Iran

2. Department of Earth Sciences, Faculty of Natural Sciences, University of Tabriz, Iran

3. Department of Earth Sciences, Faculty of Basic Sciences, Payame Noor University, Tehran, Iran

**kadkhodaie\_ali@tabrizu.ac.ir**

**DOI: 10.22078/PR.2022.4650.3090**

Received: November/16/2021

Accepted: May/08/2022

## Abstract

Shurijeh Formation is deposited in Kopeh Dagh sedimentary basin, and it is one of the gas reservoirs in northeastern Iran. Khangiran gas field with a northwest-southeast structure is located in the northeastern part of Khorasan Razavi province. The purpose of this study is to investigate facies, sedimentary environment and diagenetic processes that have been effective on the reservoir quality of Shurijeh Formation in the studied wells. Based on petrographic studies on thin sections of Shurijeh Formation in the studied wells, nine main rock facies including Sandy Conglomerate, Quartz Arenite, Sublittoralite, Subarcose, Quartz Wackes, Claystone/Shale, Nodular Anhydrite, Sandy Dolomudstone and Sandy Dologrenston have been identified that are located in the tidal, river, flood plain and meandering sedimentary zones. Petrographic studies of thin microscopic sections show that diagenetic processes in three marine, meteoric and burial environments have affected the Shurijeh Formation. The primary processes affected in the facies of Shurijeh Formation include cementation, bioturbation, primary dolomitization and anhydrite. Finally, using image log, petrophysical log and combining the results of thin section studies in the key well of Khangiran field, was determined that in most cases there is a good conformity between the results of image log, thin sections and petrophysical log.

**Keywords:** Khangiran Gas Field, Facies, Diagenesis Processes, Sedimentary Environment, Petrophysical Log and Image Log

# Optimization of Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Catalyst for Dry Methane Reforming Process in Microchannel Reactor

Seyed Reza Yahyavi and Gholamreza Moradi\*

Catalyst Laboratory, Faculty of Petroleum and Petrochemical, Razi University, Kermanshah, Iran

gmoradi @razi.ac.ir

DOI:10.22078/PR.2022.4782.3155

Received: May/16/2022

Accepted: July/13/2022

## Abstract

Inactivation of Ni catalysts in the dry reforming of methane process has been one of the issues of concern. The use of active and base phase promoters and the synthesis of Ni-CO / Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-MgO catalysts by impregnation method have been considered in our research. The main focus of this study is to evaluate the effect of addition of the promoters on the performance of synthesized catalysts in wall-coated microchannel reactor. XRD, BET and FESEM analyzes have been performed to determine the characteristics of the synthesized samples. The use of amplifiers increases the catalyst activity and makes it more stable.

**Keywords:** Catalyst, Reforming, Methane, Hydrogen, Microchannel Reactor.

# Investigation of the Effect of Marangoni Flow and Molecular Arrangement on the Stability of Nanoparticle-stabilized Foam- An Experimental Study

Fateme Reisi<sup>1</sup>, Maryam Khosravi<sup>2\*</sup>, Behzad Rostami<sup>1</sup>, Hamid Vatanparast<sup>2</sup> and Alireza Fathollahi<sup>1</sup>

1. Institute of Petroleum Engineering, School of Chemical Engineering, College of Engineering, University of Tehran, Iran

2. Petroleum Engineering Research Division, Faculty of Research and Development in Upstream Petroleum Industry (FRDUPI), Research Institute of Petroleum Industry (RIPI), Tehran, Iran

khosravim@ripi.ir

DOI:10.22078/PR.2022.4686.3105

Received: December/25/2021

Accepted: May/08/2022

## Abstract

The main purpose of this study is to determine the molecular arrangement in lamella and the role of Marangoni convection in foam stability in the presence of nanoparticles. Experiments were conducted in two different foam systems of (1) anionic nanoparticles-cationic surfactant (CTAB) and (2) anionic nanoparticles-anionic surfactant (SDS). Observations showed that the effective mechanisms of stability are different. Although nanoparticles increase the stability of both foam systems, the presence of nanoparticles in the like-charge system improves foamability. In contrast, in the unlike-charge system, foamability decreases with the increment of nanoparticle concentration. The most influential factor in the foam stability in the like-charge case is the repulsive force which sends more surfactant molecules to the interface. Surface tension results demonstrate that Marangoni flow restitutes the negative impact of gravity drainage and increases the foam stability. In contrast, In the unlike-charge system, the presence of nanoparticles at the interface increases detachment energy significantly, and as a result, the stability boosts. The accumulation of nanoparticles in the interface changes it to a solid-like and high elasticity surface; thus, Marangoni flow is lost.

**Keywords:** Faom, Foam Stability, Foamability, Nanoparticles, Marangoni Flow, Molecular Arrangement.

# Effect of Viscosity Ratio of Injection Fluid and Reservoir Fluid on Prediction of Breakthrough Time Using Percolation Concepts

Sara Shokrollahzadeh Behbahani, Mohsen Masihi\* and Mohammad Hossein Ghazanfari

Department of Chemical and Petroleum Engineering, Sharif University of Technology, Tehran, Iran

[masihi@sharif.edu](mailto:masihi@sharif.edu)

DOI:10.22078/PR.2022.4570.3060

Received: July/31/2021

Accepted: February/23/2022

## Abstract

Estimation of the breakthrough time of injected fluid in water injection process is useful for process design and injection pattern during reservoir development. Conventional approach to this is to use reservoir simulation. An alternative is to use percolation theory approach. However, some of the assumptions used in developing the scaling function of breakthrough time such as similarity of viscosity of both injection and production fluids limits its applications to field scale. In this study, we use the dimensionless time approach for breakthrough which is based on a characteristic time. By using various reservoir simulation cases the effect of fluids viscosities was studied. The results showed that the suitable characteristic time for scaling of breakthrough time depends on both NTG and viscosity ratio of phases in a power law form with exponent of 1.3.

**Keywords:** Viscosity, Percolation, Breakthrough Time, Reservoir Porous Media.

## Contents:

### **Effect of Viscosity Ratio of Injection Fluid and Reservoir Fluid on Prediction of Breakthrough Time Using Percolation Concepts**

Sara Shokrollahzadeh Behbahani, Mohsen Masihi\* and Mohammad Hossein Ghazanfari

### **Investigation of the Effect of Marangoni Flow and Molecular Arrangement on the Stability of Nanoparticle-stabilized Foam- An Experimental Study**

Fateme Reisi, Maryam Khosravi\*, Behzad Roostami, Hamid Vatanparast and Alireza Fathollahi

### **Optimization of Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Catalyst for Dry Methane Reforming Process in Microchannel Reactor**

Seyed Reza Yahyavi and Gholamreza Moradi\*

### **Facies Analysis, Diagenesis Processes and Sedimentary Environment of Shurijeh Formation in Khangiran Gas Field**

Zahra Mashayekhi, Ali Kadkhodaie\*, Ali Solgi, Seyed Ahmad Babazadeh and Seyed Mohsen Ale Ali

### **Microfacies, Sedimentary Environment and Diagenetic Processes Analysis of Ilam Formation in Gachsaran Oil Field, Zagros Basin**

Mehdi Ahmadi Nabi, Davoud Jahani and Bahman Soleimani\*

### **Magnesium Chloride Removal by Nanofiltration Membranes Prepared from Cuprous Oxide Nanoparticles**

Shakiba Ghohyei, Abdolreza Moghadassi\*, Samaneh Bandehali\*, Morteza Habibi and Maryam Eskandari

### **Investigation of the Effects of pH Scale and Ultrasonic Waves on the Stability of Copper Oxide Nanoparticles in the Pool Boiling Process**

Mohsen Khooshehchin, Sohrab Fathi, Farhad Salimi\* and Akbar Mohammadidoust\*

### **Porosity Modeling Using Simultaneously Seismic Attribute and Electrofacies Data in Sarvak Reservoir of an Iranian Oil Field**

Vali Mehdipour, Ahmad Reza Rabbani\* and Ali Kadkhodaie

### **Optimization of Asphaltenes Separation from Vacuum Distillation Residue using Liquid-Liquid Extraction by Response-surface Method**

Reza Asgari, Vahab Ghalekhondabi, Alireza Fazlali,\* Mahmoodreza Nikkholgh and Abdoreza Moghadassi

### **Nonlinear Model Predictive Controller for Electrical Submersible Pump Lifted Wells**

Farid Aldin Mirzaie Harsini and Mehdi Nazari Sarem\*



**Director in Charge:** J. Towfighi  
**Editor in Chief:** M. R. Ehsani  
**Executive Manager:** T. Moradian  
**Assistant Editor:** F. Rahmani  
**Administration Office:** N. Deldar, and P. N. Noori  
**Publishing, Lithography, and Binding Company:** Ganjineh-ye Miniator Publisher

## Editorial Board

**Aghabozorg H. R.**, Professor at RIPI  
**Bastani D.**, Professor at Sharif University of Technology  
**Ehsani M. R.**, Professor at Isfahan University of Technology  
**Ein-Mozaffari F.**, Professor at Ryerson University  
**Ghazanfari M. H.**, Associate Professor at Sharif University of Technology  
**Jafari Nasr M. R.**, Professor at RIPI  
**Jafari Behbahani T.**, Associate Professor at RIPI  
**Kadkhodaie Ilkhchi A.**, Associate Professor at University of Tabriz  
**Kamali M. R.**, Professor at School of Engineering, Edith Cowan University, Australia  
**Khamehchi E.**, Professor at Amirkabir University of Technology  
**Khorasheh F.**, Professor at Sharif University of Technology  
**Masihi M.**, Professor at Sharif University of Technology  
**Mehrvar M.**, Professor at Ryerson University  
**Moussavi Harami S. R.**, Professor at Ferdowsi University of Mashhad  
**NasrEsfahany M.**, Professor at Isfahan University of Technology  
**Nekoomanesh M.**, Professor at Iran Polymer & Petrochemical Institute  
**Omidkhah M. R.**, Professor at Tarbiat Modares University  
**Rashidi F.**, Professor at Amirkabir University of Technology  
**Rashidi A.**, Professor at RIPI  
**Rezaee R.**, Professor at Curtin University, Sydney  
**Safekordi A. A.**, Professor at Sharif University of Technology  
**Towfighi J.**, Professor at Tarbiat Modares University  
**Vasheghani Farahani E.**, Professor at Tarbiat Modares University  
**Vosoughi Sh.**, Professor at Kansas University, USA  
**Vosoughi M.**, Professor at Sharif University of Technology

## Advisory Board

Aghabozorg H. R. (RIPI)  
Aghli Gh. (Ferdowsi University of Mashhad)  
Ayati B. (Tarbiat Modares University)  
Eghbal Ahmadi M. H. (Tafresh University)  
Ehsani M. R. (Isfahan University of Technology)  
Fatemi S. M. (Sharif University of Technology)  
Ghaedi M. (Shiraz University)  
Ghazanfari M. H. (Sharif University of Technology)  
Habibnia B. (Petroleum University of Technology)  
Haghshenasfard M. (Isfahan University of Technology)  
Kadkhodaei R. (University of Tabriz)  
Khazali A. R. (Isfahan University of Technology)  
Mahani H. (Sharif University of Technology)  
Mahbobi A. (Ferdowsi University of Mashhad)  
Movahed B. (CAPE)  
Nasresfahani M. (Isfahan University of Technology)  
Pishvaei M. R. (Sharif University of Technology)  
Porkhalil M. (RIPI)  
Rahmani M. (Ami Kabir University of Technology)  
Rashidi A. M. (RIPI)  
Rashidi F. (Ami Kabir University of Technology)  
Saaedi Dehaghani A. H. (Tarbiat Modares University)  
Salehi M. A. (University of Isfahan)  
Tahkhtravanchi M. (National Petrochemical Company)  
Tayebi Sh. (RIPI)

## Address:

Research Institute of Petroleum Industry (RIPI)  
P.O. Box: 14665-137, Tehran, Iran  
Tel: (+98 21) 4825 2129, 4825 3263  
Fax: (+98 21) 4473 9712  
Website: [www.ripi.ir](http://www.ripi.ir)